SÉRIE VIII. — TOME III. N° 2. FÉVRIER 1942.

LE JOURNAL DE PHYSIQUE ET LE RADIUM

ÉNERGIES ET PÉRIODES DES DÉSINTÉGRATIONS α

Par M. ANDRÉ BERTHELOT.
Laboratoire de Chimie nucléaire, Collège de France, Paris.

I. — LES ÉNERGIES

Sommaire. — On examine les variations de l'énergie de désintégration α en fonction du nombre des constituants nucléaires des éléments radioactifs naturels. On en conclut à l'existence d'une discontinuité dans la variation des énergies de liaison des protons et des neutrons. En utilisant également les énergies de désintégration β, il a été possible de calculer les énergies de condensation des derniers protons et neutrons de tous les éléments de nombre de charge 82, 83 et 84. Enfin l'existence de photons énergiques émis par ThC″ et RaC″ est reliée à la discontinuité des énergies de liaison.

1. Leur évaluation par la voie théorique. — Le calcul des énergies de désintégration α (somme des énergies cinétiques de la particule α et du noyau de recul) est lié à celui de la masse exacte des noyaux, ou, ce qui est d'un emploi plus commode, à celui du défaut de masse

$$\Delta = M - A,$$

M et A étant respectivement la masse exacte et le nombre de masse du noyau considéré.

L'énergie de désintégration E_α est alors donnée par

$$E_\alpha = \Delta_{A,Z} - \Delta_{A-4,\,Z-2} - \Delta_\alpha.$$

La seule voie qui nous permette d'obtenir Δ par le calcul est l'emploi de la relation semi-empirique de Weiszacker [1], qui donne pour masse exacte d'un noyau contenant N neutrons et Z protons,

$$M = NM_n + ZM_p - \alpha A + \beta \frac{(N-Z)^2}{A} + \gamma A^{\frac{3}{2}} + \delta Z^2 A^{-\frac{1}{3}};$$

M_n, M_p : masses du neutron et du proton à l'état libre.

Les deux premiers termes donnent la masse du noyau en l'absence d'interaction entre les particules.

$\alpha = 13{,}86$ MV représente une énergie de liaison moyenne par particule.

$\beta = 19{,}5$ MV et le terme correspondant représente la diminution de l'énergie de condensation due à l'excès de neutrons par rapport aux protons.

$\gamma = 13{,}2$ MV et le terme correspondant représente la diminution de l'énergie de condensation due à l'effet de surface.

$\delta = 0{,}58$ MV et le terme correspondant représente la diminution de l'énergie de condensation due à l'effet de répulsion électrostatique des protons.

Essayons d'appliquer cette formule au calcul des énergies de désintégration de Ra, de Rn et de Ra A. Nous trouvons :

	Ra.	Rn.	Ra A.
$-4\alpha + 28{,}4$	$-27{,}04$	$-27{,}04$	$-27{,}04$
$+\beta\Delta\left(\frac{(N-Z)^2}{A}\right)$	$-3{,}89$	$-4{,}03$	$-4{,}17$
$+\gamma\Delta\left(A^{\frac{3}{2}}\right)$	$+5{,}80$	$+5{,}83$	$+5{,}86$
$+\delta\Delta\left(Z^2 A^{-\frac{1}{3}}\right)$	$+28{,}95$	$+28{,}45$	$+27{,}95$
E_α	$+3{,}82$	$+3{,}21$	$+2{,}60$

Or, expérimentalement on trouve respectivement 4,88, 5,59 et 6,11 MV. On constate donc que si l'ordre de grandeur est à peu près donné par la formule, par contre le sens de variation de l'énergie,

quand on suit le cours d'une filiation radioactive, est inexact. On peut se demander si cela ne tient pas au fait que les coefficients empiriques α, β, γ, δ ont été déterminés à l'aide des masses d'éléments non situés dans la région où nous appliquons maintenant la formule. On peut alors se proposer une redétermination des coefficients en cause en utilisant par exemple les valeurs expérimentales des énergies de désintégration α de Ra et de Rn. La simple considération des valeurs numériques données plus haut nous montre que le terme d'effet de surface étant le seul qui augmente quand on passe de Ra à Rn, nous devons obtenir pour γ une valeur beaucoup plus grande, et, par suite, α doit augmenter également pour que E conserve le même ordre de grandeur. En fait, en gardant pour β et δ les valeurs initiales et en utilisant les conditions indiquées plus haut pour déterminer α et γ on trouve $\alpha = 58{,}2$ MV, $\gamma = 435$ MV, valeurs tout à fait inadmissibles.

En conclusion, la formule de Weiszacker ne rend pas compte de la croissance de l'énergie de désintégration le long d'une filiation α. Il n'y a, en réalité, pas lieu d'en être surpris étant donné que :

1° Il s'agit d'une formule moyenne destinée à donner l'allure générale de la variation de la masse nucléaire en fonction de N et Z et qui ne tient aucun compte des fluctuations individuelles autour de cette moyenne, et, en particulier, de celles qui peuvent provenir de la formation de couches à l'intérieur du noyau. On sait d'ailleurs qu'à ce point de vue elle est tout à fait satisfaisante dans tout le domaine des éléments stables naturels.

2° En faisant les différences des masses données par la formule de Weiszacker pour le noyau initial et le noyau final, nous augmentons de façon considérable les erreurs relatives et nous devons considérer déjà comme remarquable de trouver un ordre de grandeur convenable pour les énergies de désintégration α.

2. **Les résultats expérimentaux.** — L'expérience ne nous a pas permis jusqu'ici la mesure des masses exactes des noyaux du domaine des radio-éléments naturels, mais ce qu'elle nous fournit c'est l'énergie des particules α, de laquelle un calcul simple permet de déduire les énergies de désintégration.

De même qu'on pouvait définir une surface $\Delta(N, Z)$, on peut en définir une autre $E_\alpha(N, Z)$ donnant l'énergie de désintégration α de chaque élément en fonction de N et Z. Il est plus commode d'ailleurs de prendre comme variables $N - Z$ et Z, la première demeurant constante au cours d'une désintégration α. Les deux fonctions considérées sont d'ailleurs liées par

$$E_\alpha = \frac{\partial[\Delta(N-Z, Z)]}{\partial Z} 2 - \Delta\alpha.$$

Avant d'examiner cette surface, faisons une remarque. Nous avons vu tout à l'heure que dans la série des descendants de Ra l'énergie E_α allait en croissant. Cependant, alors que par continuité nous nous attendons à une énergie encore plus grande pour la désintégration α de RaB, celle-ci n'est pas observée et c'est une désintégration β que donne ce corps. Mais il faut remarquer que lorsque nous disons que RaB n'émet pas de rayons α, cela veut seulement dire que la probabilité d'émission α est assez petite devant la probabilité d'émission β pour que celle-ci soit pratiquement la seule observée. Le cas du rayonnement α de Ac [2], considéré pendant longtemps comme dû à une impureté, illustre bien cette possibilité.

Si nous supposons, pour fixer les idées, que l'émission α passera inaperçue pour un rapport des probabilités égal à 10^{-4}, nous pouvons déduire de la période

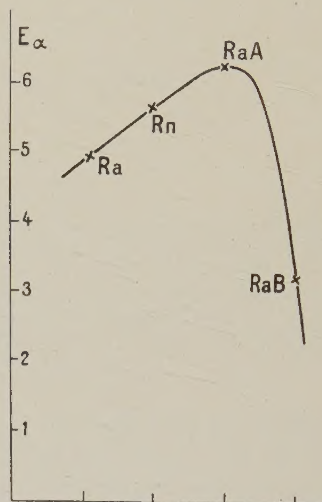


Fig. 1.

connue de RaB ce que serait sa période α en l'absence de rayonnement β, et de là déduire l'énergie α correspondant à une telle période (*fig.* 4, IIe Partie, § 3). On trouve ainsi 5,5 MV, et, comme dans cette région une diminution d'énergie de 100 000 V entraîne une augmentation de la période d'un facteur voisin de 10, on voit que, même avec des énergies E_α d'un ordre de grandeur usuel, l'émission α peut être complètement masquée par l'émission β. De plus, ce calcul montre qu'il ne suffit pas, pour expliquer l'absence des rayons α du RaB, de remarquer que le nombre relatif de neutrons allant en croissant le long d'une filiation α la tendance à l'émission β augmente également; il faut en outre que l'énergie libérée au cours d'une désintégration α éventuelle de RaB soit plus faible que celle de RaA. Si l'on trace la courbe des énergies de désintégration des descendants du Ra on doit admettre qu'elle présente un maximum pour RaA (*fig.* 1).

Nous allons trouver une confirmation de ce point

de vue en revenant à la surface $E_\alpha = f(N - Z, Z)$ dont nous allons maintenant considérer les sections par les plans $N - Z =$ const. (*fig.* 2).

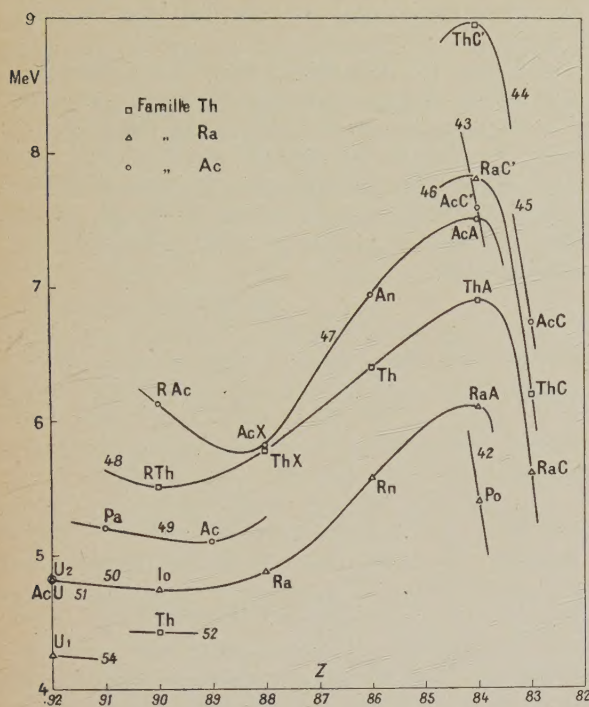


Fig. 2.

En premier lieu nous observons les trois grandes séries de filiations α des trois familles radioactives

$N - Z = 50$ UII → Io → Ra → Rn → RaA → RaB,

$N - Z = 48$ RTh → ThX → Tn → ThA → ThB,

$N - Z = 47$ RAc → AcX → An → AcA → AcB.

Notons tout de suite le parallélisme entre les courbes 50 et 48 décalées d'environ 800 000 V l'une par rapport à l'autre. La courbe 47 présente avec AcX une anomalie, l'énergie correspondante étant environ 0,55 MV trop faible pour que les courbes soient analogues.

On pourrait refaire pour ThA et AcA le raisonnement fait tout à l'heure pour RaA et montrer que ces points sont des maxima pour les courbes correspondantes. Nous trouvons confirmation de ce fait dans la position du point RaC, qui se place sur la courbe 48 à la suite et beaucoup plus bas que ThA.

Sur la courbe 49 se placeraient les points de la filiation α de l'hypothétique famille $4n + 1$. Nous y trouvons déjà le point du Pa et celui de l'embranchement α de Ac. Pour ce dernier E_α n'est pas connue avec une grande précision. Le parcours publié [2] du rayon α est de 3,6 cm correspondant à une énergie de 5 MV et une valeur de E_α égale à 5,09 MV.

Une détermination de E_α, par interpolation entre les courbes 48 et 50 conduirait à 5,20 MeV, valeur certainement compatible avec la précédente, compte tenu de l'imprécision qu'elle comporte.

Pour les valeurs de $N - Z$ supérieures à 50 nous trouvons un point sur chacune des courbes 51, 52, 54. Le point 51 (AcU) possède une énergie d'environ 200 000 V plus élevée que ce que donnerait l'interpolation entre 50 et 52. A cette réserve près, les points ainsi obtenus indiquent que les courbes se décalent constamment dans le sens des énergies décroissantes pour $N - Z$ croissant, avec une tendance marquée au resserrement.

Particulièrement intéressante est la considération des courbes relatives à des valeurs plus faibles de $N - Z$. Pour $N - Z = 46$ nous avons deux points (RaC′ et ThC) dont la position indique clairement encore une décroissance rapide pour $Z < 84$ et vraisemblablement un maximum pour $Z = 84$. Pour $N - Z = 45$, nous n'avons qu'un seul point (AcC) qui se place à droite du maximum. Pour $N - Z = 44$, le seul point connu (ThC′) correspond au maximum de la courbe. Lorsque $N - Z$ devient encore plus petit le maximum des courbes doit s'obtenir pour $Z = 85$, car le point que nous connaissons sur chacune d'elle (AcC′ pour 43 et Po pour 42) qui correspond à $Z = 84$ devient inférieur à celui de ThC′.

De cet examen il résulte que les courbes ou les éléments de courbes obtenus semblent appartenir à une famille de courbes caractérisées chacune par la valeur de $N - Z$ et se déduisant l'une de l'autre par une déformation régulière et par suite favorables aux interpolations. La forme type de ces courbes serait celle que l'on obtient effectivement pour $N - Z = 48$ et dont la caractéristique essentielle est un maximum pour $Z = 84$ ($Z = 85$ pour $N - Z \leqq 43$) avec pente douce du côté des Z élevés et pente rapide du côté des Z faibles, et peut-être aussi un minimum vers $Z = 90$. Cette série de sections nous permet de nous faire une idée de la forme de la surface E_α, laquelle doit présenter un pic aux environs de $Z = 84$, $N - Z = 44$.

3. **Interprétation du maximum.** — Pour essayer d'interpréter ce maximum, nous allons maintenant considérer les sections $Z =$ const. de la surface. Sur la figure 3 nous avons reporté ces sections avec en abcisses N au lieu de $N - Z$ afin d'éviter une superposition des courbes. Le maximum de la surface se traduit :

1° Par le maximum de la section $Z = 84$.

2° Par le décalage vers les basses énergies de la section $Z = 83$ par rapport à ce que donnerait une extrapolation à cette valeur du déplacement des autres courbes.

Pour interpréter le maximum de la courbe 84,

demandons-nous d'abord quel sens il faut donner à la variation de E_α entre deux isotopes différents de 1 neutron. Soient donc deux isotopes ayant N et $N - 1$ neutrons; leurs produits de désintégration α sont également deux isotopes ayant $N' = N - 2$ et $N' - 1 = N - 3$ neutrons. Désignons par E_N et $E_{N'}$ l'énergie de condensation du dernier neutron des noyaux de N et N' neutrons, par $E_{\alpha,N}$ et $E_{\alpha,N-1}$ l'énergie de désintégration α des noyaux N et $N - 1$ neutrons. La conservation de l'énergie (*voir* schéma *fig.* 4) nous permet d'écrire

Fig. 3.

Fig. 4.

$$E_N + E_{\alpha,N} = E_{\alpha,N-1} + E_{N'},$$

$$E_{\alpha,N} - E_{\alpha,N-1} = E_{N'} - E_N,$$

ce qui signifie que la différence entre les énergies de désintégration α de deux isotopes de N et $N - 1$ neutrons est égale à la différence des énergies de condensation du dernier neutron du noyau final et du noyau initial de la désintégration α du noyau à N neutrons.

Considérons maintenant la série des éléments de $Z = 84$ et les énergies de désintégration correspondantes. Nous pouvons en déduire la différence des énergies de liaison du dernier neutron du noyau final et du noyau initial pour chacune d'elle (ou des deux derniers neutrons dans le cas où un des isotopes est absent). Nous pouvons alors dresser le tableau suivant :

$Z = 84$.		$Z = 82$.	$Z = 82$. $Z = 84$.
Po (126)	$\xrightarrow{5,403}$	Pb_{206} (124)	
AcC′ (127)	$\xrightarrow{7,559}$	Pb_{207} (125)	$\varepsilon_{Pb_{207}} - \varepsilon_{AcC'} = +2,196$
ThC′ (128)	$\xrightarrow{8,948}$	Pb_{208} (126)	$\varepsilon_{Pb_{208}} - \varepsilon_{ThC'} = +1,349$
X (129)	$\longrightarrow$	X′ (127)	
RaC′ (130)	$\xrightarrow{7,829}$	RaD (128)	$\varepsilon_{2RaD} - \varepsilon_{2RaC'} = -1,119$
AcA (131)	$\xrightarrow{7,508}$	AcB (129)	$\varepsilon_{AcB} - \varepsilon_{AcA} = -0,321$
ThA (132)	$\xrightarrow{6,903}$	ThB (130)	$\varepsilon_{ThB} - \varepsilon_{ThA} = -0,605$
X (133)	$\longrightarrow$	X′ (131)	
RaA (134)	$\xrightarrow{6,113}$	RaB (132)	$\varepsilon_{2RaB} - \varepsilon_{2RaA} = -0,790$

ε_A et ε_{2A} désignent respectivement l'énergie de condensation du dernier ou des deux derniers neutrons du noyau A. On constate donc que les derniers neutrons de la série $Z = 82$ sont d'abord plus fortement liés que ceux de la série $Z = 84$, puis ensuite c'est l'inverse qui a lieu. La figure 5 reproduit les résultats du tableau ci-dessus. En abscisse on a porté le nombre de neutrons du noyau de la série 84.

Fig. 5.

Il y a évidemment deux façons simples d'interpréter cette discontinuité, suivant qu'on la rattache à la série $Z = 84$ ou à la série $Z = 82$. Dans le premier cas il faudrait supposer que les neutrons sont plus fortement liés à partir du 129ᵉ et dans le second cas, au contraire, on doit supposer qu'à partir du 127ᵉ les neutrons associés à 82 protons sont moins fortement liés. C'est évidemment cette deuxième hypothèse qui est à retenir.

Nous sommes donc conduits à admettre une discontinuité dans l'énergie de liaison des neutrons associés à 82 protons pour former un noyau, cette discontinuité étant de l'ordre de 2,4 MeV (voir *fig.* 5) *et se produisant au delà du* 126ᵉ *neutron.*

Si l'on considère maintenant la courbe $Z = 83$, un calcul analogue à celui que nous avons fait pour RaB montre que RaE n'émet certainement pas de rayons α d'énergie supérieure à 5,5 MeV, ce qui entraîne que cette courbe présente aussi un maximum pour le point à 128 neutrons (AcC). Un raisonnement analogue au précédent montre que dans la série $Z = 81$ l'énergie de condensation des neutrons subit une discontinuité au delà du 126ᵉ. Elsasser [3] examinant les courbes 84 et 83 avait conclu à l'existence de couches neutroniques s'édifiant indépendamment des protons existant par ailleurs dans le noyau. Il n'en est certainement pas ainsi, car dans un tel cas les énergies de condensation de neutrons ne dépendraient que de leur numéro d'ordre et seraient indépendantes du nombre de protons nucléaires. Nous pourrions alors écrire, en reprenant notre tableau précédent et en désignant par ε_N l'énergie de condensation du $N^{\text{ième}}$ neutron

$$\varepsilon_{125} - \varepsilon_{127} = +2,196,$$
$$\varepsilon_{126} - \varepsilon_{128} = +1,349,$$
$$\varepsilon_{127+128} - \varepsilon_{129+130} = -1,119,$$
$$\varepsilon_{129} - \varepsilon_{131} = -0,321,$$
$$\ldots\ldots\ldots\ldots\ldots\ldots$$

Le changement de signe au second membre montre que si, comme il est normal, les neutrons sont d'abord d'autant plus fortement liés que leur numéro d'ordre est plus faible, c'est l'inverse qui se produit ensuite, contrairement à ce qui devrait avoir lieu. On ne peut donc pas supposer que la couche de neutrons s'édifie indépendamment des protons. Nous sommes plutôt conduits à penser qu'une interaction assez intense se produit entre neutrons et protons. Il faut remarquer que cette interaction nous apparaît ici comme une conséquence du fait que l'énergie de désintégration α décroît quand le nombre de neutrons augmente. Comme, en dehors de la portion de la courbe $Z = 84$ déjà étudiée, c'est un caractère général des courbes $Z = \text{const.}$, on peut en déduire que, d'une façon générale, dans tout le domaine des radioéléments naturels l'allure de la variation des énergies de désintégrations α traduit l'existence d'une interaction neutron-proton. Nous préciserons plus loin ces résultats dans le cas de $Z' = 84$.

Examinons maintenant la position de la courbe 83. Nous sommes conduits à chercher la signification de la différence des énergies de désintégration α de deux éléments ayant même nombre de neutrons et différant de un proton, et nous pouvons dire, comme tout à l'heure, que cette différence représente la différence entre les énergies de condensation du dernier proton sur le noyau final et le noyau initial.

En désignant par ε'_A l'énergie de condensation du dernier proton du noyau A, nous pouvons écrire

$$\varepsilon'_{\mathrm{AcB}} - \varepsilon'_{\mathrm{AcA}} = 1,90\ MV,$$
$$\varepsilon'_{\mathrm{Pb}_{208}} - \varepsilon'_{\mathrm{ThC'}} = 2,23\ MV,$$

et par interpolation

$$\varepsilon'_{\mathrm{RaC'}} - \varepsilon'_{\mathrm{RaD}} = 2,05\ MV,$$

alors que dans toutes les autres régions du diagramme les différences analogues sont beaucoup plus faibles, par exemple

$$\varepsilon'_{2\mathrm{ThA}} - \varepsilon'_{2\mathrm{Th}} = 0,30\ MV.$$

On en conclut que les derniers protons de AcB, Pb_{208}, RaC′ sont plus fortement condensés que ce n'est le cas pour les autres éléments émetteurs α. Cette remarque a permis à Elsasser [3] de supposer l'existence d'une couche comprenant 82 protons et indépendante de la formation des couches neutroniques. Nous avons vu tout à l'heure que l'on ne pouvait pas envisager l'édification de couches neutroniques sans tenir compte des protons, il serait alors illogique de supposer que les couches protoniques peuvent s'édifier indépendamment des neutrons. Aussi serions-nous plutôt tentés de considérer que l'ensemble 82 protons + 126 neutrons (Pb_{208}) forme un noyau particulièrement stable et que toute particule supplémentaire qui s'y fixe ne le fait qu'avec une libération d'énergie relativement faible.

De plus, on peut remarquer que parmi les isotopes connus de $Z = 82$ ceux qui ont plus de neutrons que le noyau saturé, soit 127 (produit de la réaction Pb_{208} d, p), 128 (RaD), 129 (AcB), 130 (ThB), 132 (RaB), sont tous instables vis-à-vis de l'émission β. Les noyaux qui ont 126 neutrons et moins, soit 126 (Pb_{208}), 125 (Pb_{207}), 124 (Pb_{206}), 122 (Pb_{204}), sont tous stables. Ceci est en accord avec nos conclusions précédentes et tient au fait que les neutrons extérieurs au noyau condensé sont seuls assez peu fortement liés pour que leur remplacement par un proton soit exoénergétique.

Inversement, si nous considérons tous les éléments ayant 126 neutrons, on peut s'attendre à ce que celui qui a le plus de protons soit instable vis-à-vis de l'émission positronique. Mais nous verrons plus loin, en calculant les énergies de liaison, que les protons sont plus fortement liés que les neutrons, et il en résulte qu'un tel processus (et même

une capture d'électrons K) serait endoénergétique.

Mais, par contre, pour un élément qui aurait plus de 82 protons et moins de 126 neutrons la transformation d'un proton en neutron serait fortement exoénergétique et donnerait lieu à l'émission de positrons ou à la capture d'électrons K. Malheureusement de tels éléments (Bi_{208}, Po_{209}) sont encore inconnus et la vérification n'est pas possible.

Le processus inverse est réalisé par l'émission β fortement exoénergétique des corps à plus de 126 neutrons et moins de 82 protons (ThC″ et RaC″) que nous étudierons plus loin.

Pour simplifier le langage nous désignerons désormais par « noyau condensé » et « neutrons et protons extérieurs » le noyau formé par 82 protons et 126 neutrons (Pb_{208}) et les neutrons et protons supplémentaires qui peuvent y être fixés.

4. Les énergies de liaison des neutrons et protons. — Pour préciser ce que nous venons de dire, nous allons maintenant chercher à évaluer les énergies de liaisons neutroniques ou protoniques elles-mêmes au lieu des différences seules intervenues jusqu'ici. Nous considérerons les désintégrations α et β intéressant les éléments de $Z = 84$, 83 ou 82 (*voir* Tableau I) qui sont les seuls pour lesquels nous ayons les éléments suffisants.

Remarquons que chaque fois qu'une filiation radioactive se compose d'une désintégration α et de deux désintégrations β dans un ordre quelconque elle fait passer d'un élément à son isotope ayant 4 neutrons de moins. L'évaluation de l'énergie libérée au cours de cette série de désintégrations nous permet de calculer l'énergie de liaison des quatre neutrons. En effet, on peut imaginer le processus suivant partant du même état initial et aboutissant au même état final :

1° On enlève les quatre derniers neutrons, ce qui absorbe l'énergie de liaison correspondante E_{4n}.

2° On transforme en protons deux de ces neutrons, ce qui libère deux fois 0,84 MeV, compte tenu de l'énergie nécessaire à la création des électrons (en supposant nulle la masse du neutrino).

3° On condense les quatre particules lourdes en une particule α, ce qui libère 28,2 MeV (¹).

Si E_c est l'énergie cinétique expérimentalement observée dans l'ensemble des trois désintégrations, la conservation de l'énergie entraîne

$$E_{4n} = 29,88 - E_c.$$

Le Tableau II comporte les renseignements obtenus pour les isotopes de nombre de charge 82, 83, 84. Pour ThC et RaC, nous avons utilisé pour évaluer les énergies les embranchements C → C′ → D, dans lesquels les limites de spectre β semblent donner effectivement l'énergie libérée, alors que dans l'autre embranchement des émissions γ viennent compliquer le problème. Pour AcC, dont on ne connaît pas la limite du spectre β, nous avons admis qu'elle était 0,75 MeV obtenu par la règle de conservation de l'énergie appliquée aux deux embranchements.

Pour simplifier le langage, nous emploierons la notation suivante.

$$E_{4n}^{Z.N}$$

désignera l'énergie de liaison des quatre derniers neutrons d'un noyau comportant Z protons et N neutrons en plus des 82 protons et 126 neutrons constituant ce que nous avons appelé le noyau condensé.

1° Considérons d'abord le cas le plus simple : celui des isotopes de $Z' = 84$. On constate que l'énergie de liaison des quatre derniers neutrons est du même ordre de grandeur et décroît légèrement avec le numéro d'ordre des neutrons en cause.

Remarquons que

$$E_{4n}^{Z.N} - E_{4n}^{Z.N+2} = E_{2n}^{Z.N-2} - E_{2n}^{Z.N+2},$$

de sorte que nous en déduisons que le 3ᵉ groupe de deux neutrons est moins lié que le premier de 0,35 MeV et le 4ᵉ groupe est moins lié que le second de 0,40 MeV. Ces nombres sont d'ailleurs déterminés avec la précision des limites de spectres continus, de telle sorte que nous pouvons les considérer comme égaux et admettre que les énergies de liaison des différents groupes de deux neutrons sont en progression arithmétique, et l'on en déduit

$$\left.\begin{array}{ll} E_{2n}^{2,2} = 10,45, & E_{2n}^{2,4} = 10,27, \\ E_{2n}^{2,6} = 10,09, & E_{2n}^{2,8} = 9,91. \end{array}\right\} \quad (1)$$

Nous laissons de côté pour l'instant le cas de cinq neutrons. Nous y reviendrons plus loin.

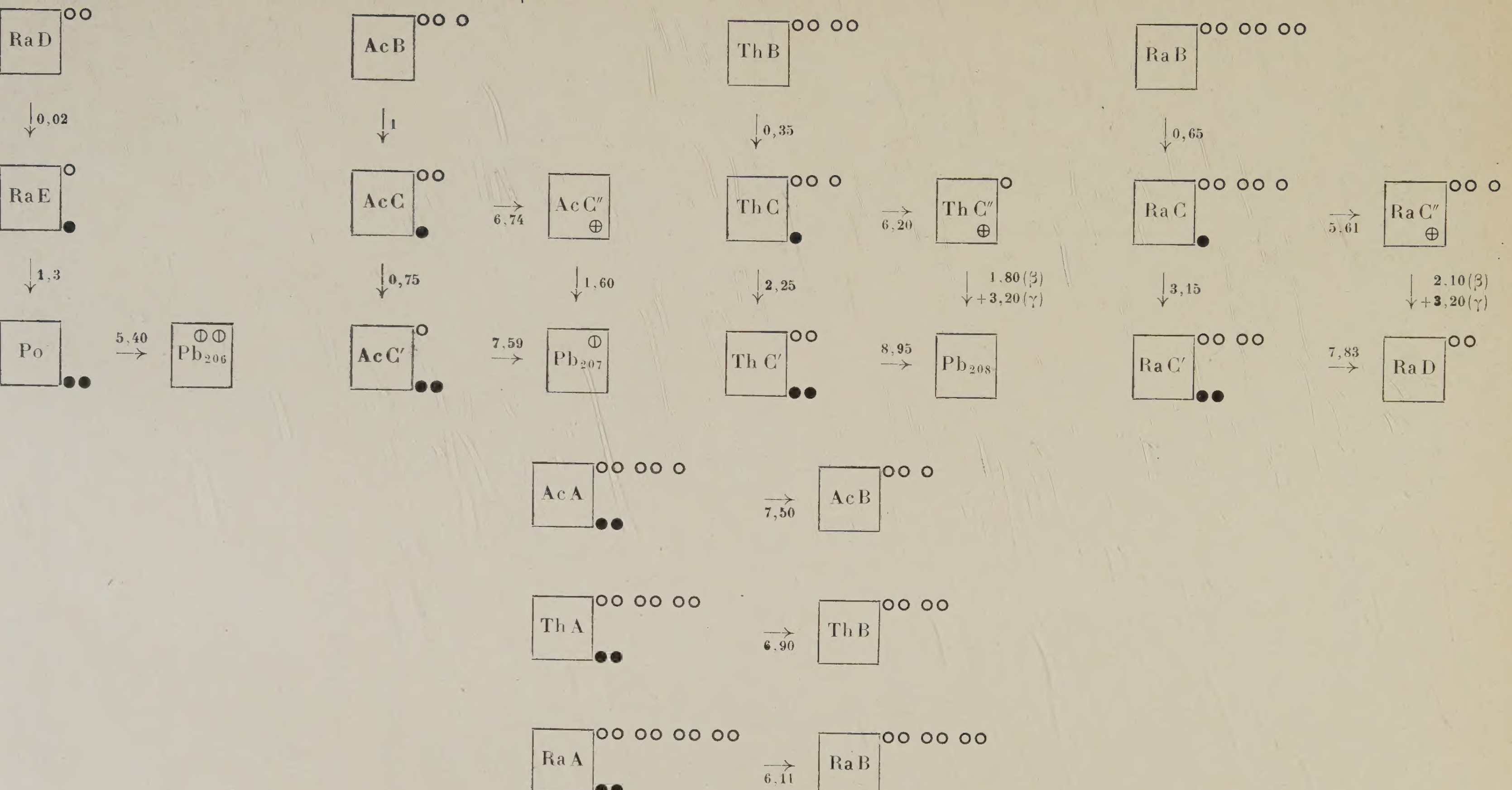
2° Examinons maintenant le cas de $Z = 82$. Les résultats diffèrent profondément des précédents et nous voyons tout de suite que l'énergie de liaison varie beaucoup selon que l'on considère ou non des neutrons du noyau condensé. En ne considérant que des neutrons extérieurs et en admettant que les énergies sont comme précédemment en progression arithmétique, on trouve

$$E_{2n}^{0,2} = 9,19, \qquad E_{2n}^{0,4} = 9,15, \qquad E_{2n}^{0,6} = 9,11. \quad (2)$$

Ces énergies sont respectivement 1,26 — 1,12, — 0,98 MeV plus faibles que dans le cas précédent. Ceci illustre ce que nous avons signalé précédemment en disant que les couches neutroniques ne s'édifiaient pas indépendamment des couches protoniques, mais qu'une forte interaction existait entre elles.

(¹) On a pris comme masse atomique du proton 1,0081, du neutron 1,0090, de la particule α 4,0039. (Nombres des *Tables Internationales de Constantes.*)

TABLEAU I.



□ noyau condensé.
○ neutron.
● proton.
⦶ neutron enlevé.
⊕ proton enlevé.

↓ désintégration β.
→ désintégration α.

Si maintenant nous considérons le cas où deux des quatre neutrons sont extraits du noyau condensé, nous voyons que l'énergie nécessaire pour les extraire est égale à

$$E_{2n}^{0,0} = 23,16 - 9,19 = 13,97 \text{ MeV}, \qquad (3)$$

soit 4,78 MeV de plus que dans le cas des neutrons extérieurs. Ceci confirme à la fois l'interprétation que nous avions faite du maximum des courbes d'énergie α et l'ordre de grandeur que nous en avions déduit.

3° Nous pouvons maintenant déterminer l'énergie de liaison de deux protons sur un noyau en fonction du nombre de neutrons extérieurs qu'il contient.

TABLEAU II.

Processus.	Schéma.	E_{4n}.
	$Z = 84$.	
RaC′ $\xrightarrow[7,83]{\alpha}$ RaD $\xrightarrow[0,02]{\beta}$ RaE $\xrightarrow[1,30]{\beta}$ RaF	□ oo oo / ●● $\xrightarrow[9,15]{}$ □ / ●●	20,73
AcA $\xrightarrow[7,50]{\alpha}$ AcB $\xrightarrow[1]{\beta}$ AcC $\xrightarrow[0,75]{\beta}$ AcC′	□ oo oo o / ●● $\xrightarrow[9,25]{}$ □ o / ●●	20,63
ThA $\xrightarrow[6,90]{\alpha}$ ThB $\xrightarrow[0,35]{\beta}$ ThC $\xrightarrow[2,25]{\beta}$ ThC′	□ oo oo oo / ●● $\xrightarrow[9,50]{}$ □ oo / ●●	20,38
RaA $\xrightarrow[6,11]{\alpha}$ RaB $\xrightarrow[0,65]{\beta}$ RaC $\xrightarrow[3,15]{\beta}$ RaC′	□ oo oo oo oo / ●● $\xrightarrow[9,91]{}$ □ oo oo / ●●	19,97
	$Z = 83$.	
RaC $\xrightarrow[3,15]{\beta}$ RaC′ $\xrightarrow[7,83]{\alpha}$ RaD $\xrightarrow[0,02]{\beta}$ RaE	□ oo oo o / ● $\xrightarrow[11,00]{}$ □ o / ●	18,88
	$Z = 82$.	
RaD $\xrightarrow[0,02]{\beta}$ RaE $\xrightarrow[1,30]{\beta}$ RaF $\xrightarrow[5,40]{\alpha}$ Pb_{206}	□ oo $\xrightarrow[6,72]{}$ □ ⦶⦶	23,16
AcB $\xrightarrow[1]{\beta}$ AcC $\xrightarrow[0,75]{\beta}$ AcC′ $\xrightarrow[7,59]{\alpha}$ Pb_{207}	□ oo o $\xrightarrow[9,34]{}$ □ ⦶	20,54
ThB $\xrightarrow[0,35]{\beta}$ ThC $\xrightarrow[2,25]{\beta}$ ThC′ $\xrightarrow[8,95]{\alpha}$ Pb_{208}	□ oo oo $\xrightarrow[11,55]{}$ □	18,33
RaB $\xrightarrow[0,65]{\beta}$ RaC $\xrightarrow[3,15]{\beta}$ RaC′ $\xrightarrow[7,83]{\alpha}$ RaD	□ oo oo oo $\xrightarrow[11,63]{}$ □ oo	18,25

Considérons en effet les désintégrations α de ThC′, RaC′, ThA, RaA, nous pouvons pour évaluer l'énergie libérée imaginer le processus suivant :

1° On enlève deux neutrons et les relations (1), nous donnent l'énergie absorbée par cette opération.

2° On enlève deux protons, ce qui absorbe l'énergie cherchée E_{2p}.

3° On condense le tout en une particule α, ce qui libère 28,2 MeV.

Il suffit alors d'écrire que l'énergie ainsi déterminée est égale à l'énergie de désintégration. On en déduit ainsi

$$\left.\begin{aligned} E_{2p}^{2,0} &= 28,2 - 10,45 - 8,95 = \ 8,80, \\ E_{2p}^{2,2} &= 28,2 - 10,27 - 7,83 = 10,10, \\ E_{2p}^{2,4} &= 28,2 - 10,09 - 6,90 = 11,21, \\ E_{2p}^{2,6} &= 28,2 - \ 9,91 - 6,11 = 12,18. \end{aligned}\right\} \qquad (4)$$

Ce qui montre que deux protons se lient d'autant plus fortement qu'il y a plus de neutrons dans le noyau. C'est un autre aspect de cette interaction des neutrons et des protons déjà signalée.

Nous pouvons maintenant préciser que cette interaction n'est pas tout à fait fonction linéaire du nombre de neutrons, mais que, par groupe de deux neutrons supplémentaires, elle décroît de 1,30 MeV à 1 MeV quand le nombre total des neutrons extérieur passe de 0 à 6.

4° Revenons maintenant au Tableau II pour considérer le cas d'un nombre impair de neutrons. Pour expliquer l'absence dans la nature des éléments de nombre de masse pair et de nombres impairs de protons et neutrons, on est conduit à admettre que les neutrons ou les protons se groupent par deux [4], conformément au principe de Pauli, réalisant quelque chose d'analogue aux couches électroniques de l'atome. Dans ces conditions, on doit s'attendre à ce que les neutrons ou les protons de numéro d'ordre impair aient une énergie de liaison plus faible que ceux de numéro pair.

La considération des énergies E_{4n} ne peut pas

nous renseigner là-dessus. Considérons, par exemple, le cas de la filiation de AcA qui a cinq neutrons. L'énergie nécessaire pour enlever les quatre derniers neutrons est trouvée intermédiaire entre celle qui correspond aux corps à quatre et à six neutrons et cela est normal, car, dans tous les cas, on enlève toujours deux neutrons fortement liés et deux neutrons faiblement liés.

Dans la série $Z = 82$, nous ne connaissons pas le E_{4n} correspondant au corps à cinq neutrons, mais nous pouvons, d'après la remarque qui précède, l'estimer à 18,28, intermédiaire entre le cas des corps à quatre et six neutrons.

Dans la série $Z = 83$, nous ne connaissons que le corps à cinq neutrons et nous voyons que l'introduction d'un proton a augmenté l'énergie de condensation des quatre derniers neutrons de 0,6 MeV (soit 0,3 MeV par groupe de deux neutrons consécutifs), alors que l'introduction de 2 protons augmentait la même énergie de 2,35 MeV.

5° Examinons maintenant à la lumière de ce qui précède les énergies de désintégrations β des isotopes de $Z = 82$ et d'abord les trois éléments qui ont un nombre pair de neutrons. La différence des énergies de désintégration entre deux isotopes provient :

a. De la différence d'énergie de liaison des neutrons qui se transforment.

b. De la différence d'énergie de condensation des neutrons restants due à l'interaction avec le proton qui se forme.

Dans le cas qui nous occupe, l'énergie de liaison diminue de 0,04 MeV par groupe de deux neutrons, c'est-à-dire approximativement de 0,02 par neutron et nous venons de voir que l'énergie de condensation augmentait de 0,30 MeV par groupe de deux neutrons. On doit donc s'attendre à ce que les énergies β augmentent de 0,32 MeV chaque fois qu'on augmentera de deux le nombre des neutrons. Or, les nombres expérimentaux sont : 0,02, 0,35, 0,65, ce qui est en excellent accord avec nos déductions.

Si l'on considère maintenant la désintégration de AcB, l'énergie libérée est bien plus grande que la moyenne de celles des deux éléments qui l'encadrent et cela tient justement à ce que le dernier neutron de AcB est impair et moins lié que les autres.

Pour évaluer ce défaut d'énergie de liaison, on peut imaginer que la transformation β de AcB se produit de la façon suivante :

a. On enlève le troisième neutron, ce qui absorbe l'énergie E_3.

b. Le noyau restant qui est RaD se transforme avec libération de 0,02 MeV.

c. On refixe le neutron, ce qui libère l'énergie E_2, plus le supplément dû à l'action du nouveau proton qu'on peut, d'après 4°, en première approximation prendre égal à 0,15 MeV.

On peut donc écrire

$$E_2 - E_3 = 1 - 0,17 = 0,83 \text{ MeV},$$

donc un neutron impair a une énergie de liaison inférieure de 0,83 MeV à celle d'un neutron pair, dans la série $Z = 82$. De là, on déduit en utilisant les relations (2)

$$\left.\begin{array}{lll} E^{0,1}_{1n} = 4,18, & E^{0,2}_{1n} = 5,01, & E^{0,3}_{1n} = 4,16, \\ E^{0,4}_{1n} = 4,99, & E^{0,5}_{1n} = 4,14, & E^{0,6}_{1n} = 4,97. \end{array}\right\} \quad (5)$$

Il est très intéressant de remarquer que Surugue [5] étudiant le spectre de AcB a montré qu'il y avait émission d'un photon de 0,829 MeV, éventuellement décomposé en plusieurs photons ayant la même somme. D'où il avait conclu, en accord avec les courbes de Lecoin [6] que le spectre β de AcB se composait de deux spectres dont les énergies maxima différaient de 0,829 MeV. Cela voudrait dire que le processus que nous avions imaginé plus haut doit correspondre à une possibilité réelle et que le spectre β peut provenir soit de la transformation du deuxième neutron, auquel cas le troisième neutron vient ensuite occuper la place laissée vacante, en libérant l'énergie correspondante en un ou plusieurs photons, soit de la transformation du troisième neutron qui donne des β plus énergiques.

6° Nous allons maintenant chercher à évaluer la même discontinuité pour $Z = 84$. Pour cela, nous allons utiliser le fait que l'énergie de désintégration α de AcA est supérieure à la moyenne des énergies de désintégration de ThA et RaC′. En utilisant la relation du paragraphe 3, nous avons

$$E_{\alpha\,\text{ThA}} - E_{\alpha\,\text{AcA}} = -0,60 = E^{0,4}_{1n} - E^{2,6}_{1n},$$
$$E_{\alpha\,\text{AcA}} - E_{\alpha\,\text{RaC}'} = -0,33 = E^{0,3}_{1n} - E^{2,5}_{1n},$$

d'où, par soustraction,

$$(E^{0,4}_{1n} - E^{0,3}_{1n}) - (E^{2,6}_{1n} - E^{2,5}_{1n}) = -0,27,$$

or

$$E^{0,4}_{1n} - E^{0,3}_{1n} = 4,99 - 4,16 = 0,83,$$

d'où

$$E^{2,6}_{1n} - E^{2,5}_{1n} = 1,10 \text{ MeV},$$

et comme

$$E^{2,5}_{1n} + E^{2,6}_{1n} = 10,09 \text{ MeV},$$
$$E^{2,5}_{1n} = 4,50 \text{ MeV}, \qquad E^{2,6}_{1n} = 5,60 \text{ MeV}.$$

En admettant le même rapport d'énergie pour les constituants des autres groupes de deux neutrons, on a

$$\left.\begin{array}{ll} E^{2,1}_{1n} = 4,65, & E^{2,2}_{1n} = 5,80, \\ E^{2,3}_{1n} = 4,57, & E^{2,4}_{1n} = 5,70, \\ E^{2,7}_{1n} = 4,37, & E^{2,8}_{1n} = 5,54. \end{array}\right\} \quad (6)$$

7° Nous pouvons maintenant calculer les énergies de liaison d'un seul proton sur différents noyaux. Si,

par exemple, on réalise ainsi la transformation de RaD :

a. On enlève un neutron, ce qui absorbe 5,01 MeV d'après (5).

b. On le transforme en proton, ce qui libère 0,84 MeV.

c. On condense ce proton, ce qui libère l'énergie cherchée $E_{1p}^{1,1}$. On peut écrire que cette énergie est égale à 0,02 MeV, d'où

$$E_{1p}^{1,1} = 5,01 + 0,02 - 0,84 = 4,19 \text{ MeV},$$

et de même

$$\left.\begin{aligned} E_{1p}^{1,2} &= 4,16 + 1 \quad\;\; - 0,84 = 4,32 \text{ MeV}, \\ E_{1p}^{1,3} &= 4,99 + 0,35 - 0,84 = 4,50 \text{ MeV}, \\ E_{1p}^{1,5} &= 4,97 + 0,65 - 0,84 = 4,78 \text{ MeV}, \end{aligned}\right\} \qquad (7)$$

et par interpolation ou extrapolation

$$E_{1p}^{1,0} = 4,00, \qquad E_{1p}^{1,4} = 4,62, \qquad E_{1p}^{1,6} = 4,90.$$

Comme on a par ailleurs (4) les énergies de liaison de deux protons, on en déduit celles du deuxième proton sur 0, 2, 4, 6 neutrons

$$\left.\begin{aligned} E_{1p}^{2,0} &= 4,80, \qquad E_{1p}^{2,2} = 5,78, \\ E_{1p}^{2,4} &= 6,59, \qquad E_{1p}^{2,6} = 7,28, \end{aligned}\right\} \qquad (8)$$

ce qui indique que le deuxième proton est beaucoup plus fortement condensé que le premier et cela d'autant plus qu'il y a plus de neutrons.

8° Nous allons également pouvoir calculer l'énergie à fournir pour sortir un seul neutron du noyau condensé. D'après le Tableau II, pour extraire trois neutrons extérieurs et un neutron intérieur de AcB, il faut 20,54 MeV. Or, pour les trois premiers, il faut, d'après (5),

$$4,16 + 5,01 + 4,18 = 13,35 \text{ MeV},$$

d'où l'énergie d'extraction d'un neutron du noyau condensé

$$E_{1n}^{0,0} = 20,54 - 13,35 = 7,19 \text{ MeV}. \qquad (9)$$

Nous avons vu que, pour en extraire deux, il fallait 13,97 MeV, donc l'extraction du deuxième neutron demande $E_{1n}^{0,1} = 6,78$ MeV, énergie un peu plus faible que la précédente, comme on devait s'y attendre.

9° De même, on peut calculer l'énergie de liaison d'un proton du noyau condensé. La désintégration α de AcC peut être réalisée de la façon suivante :

a. On enlève un proton (— 4,32 MeV).

b. On enlève deux neutrons (— 9,19 MeV).

c. On enlève un proton (— $E_{1p}^{0,0}$).

d. On condense les quatre particules en un α (+ 28,2).

L'énergie totale est égale à 6,74. D'où

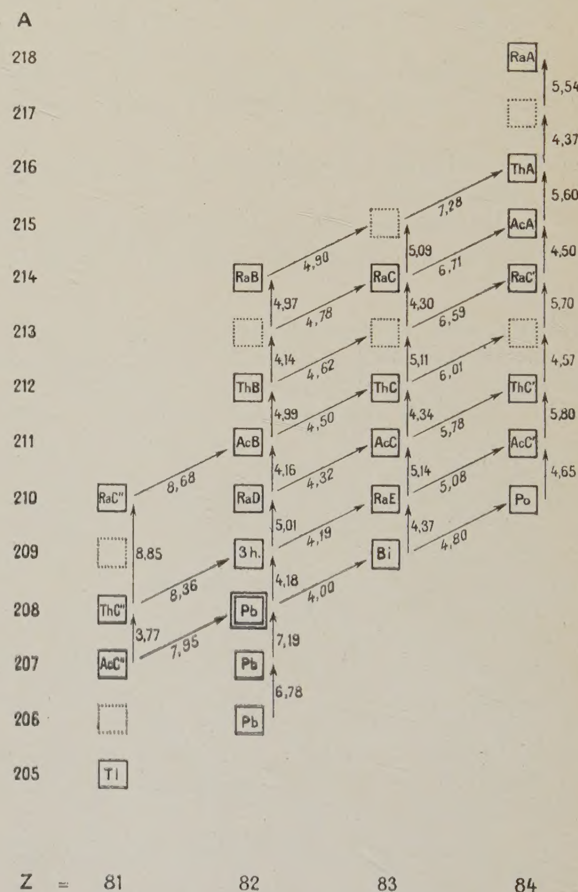
$$E_{1p}^{0,0} = 28,2 - 4,32 - 9,19 - 6,74 = 7,95 \text{ MeV},$$

et de même

$$\left.\begin{aligned} E_{1p}^{0,1} &= 28,2 - 4,50 - 9,17 - 6,17 = 8,36 \text{ MeV}, \\ E_{1p}^{0,3} &= 28,2 - 4,78 - 9,13 - 5,61 = 8,68 \text{ MeV}. \end{aligned}\right\} \qquad (10)$$

On trouve encore des nombres qui augmentent avec le nombre de neutrons, ce qui montre l'existence d'une interaction entre les neutrons extérieurs au noyau condensé et les protons intérieurs. Ces énergies de liaison sont beaucoup plus élevées que celles correspondant aux protons extérieurs, ce qui justifie, vis-à-vis des protons comme vis-à-vis des neutrons, la considération de ce noyau condensé. Il faut cependant noter que, lorsque le nombre de neutrons extérieurs augmente, la différence diminue entre les deux énergies (8) et (10), ce qui pourrait indiquer qu'avec un plus grand nombre de neutrons, la discontinuité apparaissant pour 82 protons tend à s'atténuer.

Tableau III. — *Énergie libérée par condensation d'un neutron (↑) ou d'un proton (↗).*



10° L'ensemble des résultats numériques précédents se trouve résumé dans le Tableau III. Nous en avons ajouté quelques autres qui en dérivent immédiatement par application du théorème de conservation de l'énergie à des transformations de

mêmes états initial et final qu'il est facile d'imaginer.

Ce tableau joue vis-à-vis des transformations radioactives un rôle analogue à un tableau de termes spectroscopiques et contient implicitement toutes les énergies de désintégrations β et α des éléments en cause.

L'énergie libérée dans une transformation β s'obtiendra en imaginant qu'on condense un proton, puis qu'on libère un neutron et qu'on transforme celui-ci en un proton et un électron. On voit de la sorte que l'énergie β sera obtenue en faisant la somme algébrique des énergies le long d'un chemin quelconque partant du noyau initial et aboutissant au noyau final et en ajoutant 0,84 MeV au résultat.

Par exemple pour ThC $\xrightarrow{\beta}$ ThC′ nous trouvons

$$E_\beta = 0,84 + 6,01 - 4,57 = 2,28 \text{ MeV}.$$

L'énergie libérée dans une transformation α s'obtiendra en imaginant qu'on retire successivement deux neutrons et deux protons, puis qu'on les condense en une particule α, ce qui libère 28,2 MeV. Dans le cas de ThC, nous trouverons

$$E_\alpha = 28,2 - 4,34 - 5,14 - 4,19 - 8,36 = 6,17 \text{ MeV}.$$

En particulier l'emploi du Tableau III permet de prévoir certaines des énergies de désintégrations α ou β des noyaux qui y figurent et qui n'ont pas fait l'objet de déterminations expérimentales, tels que ceux de la famille $4n + 1$.

5. **La désintégration des corps C″**. — Considérons d'abord AcC″, et imaginons le processus suivant pour la désintégration :

1° On condense un proton ($E^{0,0}_{1p} = 7,95$ MeV);
2° On extrait un neutron ($E^{0,0}_{1n} = 7,19$ MeV);
3° On transforme ce dernier en proton ($E = 0,84$ MeV),

d'où l'énergie totale $7,95 + 0,84 - 7,19 = 1,60$ MeV, qui est bien égale à l'énergie expérimentale.

Passons à ThC″. Le même raisonnement donne, pour l'énergie libérée dans la désintégration,

$$8,36 + 0,84 - 4,18 = 5,02 \text{ MeV},$$

ceci est bien égal à l'énergie totale libérée à la fois sous forme de rayons γ (3,18 MeV) et d'énergie cinétique β (1,80 MeV) [7]. L'interprétation la plus simple de ce partage consiste à admettre que, comme dans le cas de AcC″, la désintégration β se fait à l'intérieur du noyau condensé, un neutron venant occuper la place du proton libre avec émission d'un électron. Ainsi s'explique-t-on que les énergies maxima des spectres β de AcC″ et ThC″ soient très voisines, la seule différence vient de la perturbation apportée aux énergies des neutrons et du proton intéressés par la transformation, par la présence d'un neutron extérieur. La première de ces perturbations est égale d'après (10) à 0,41 MeV, il suffirait que la seconde soit de 0,20 MeV pour rendre compte de la différence observée entre les limites des spectres β.

L'émission de rayonnement γ correspond ensuite au passage du neutron extérieur à la place devenue libre dans le noyau condensé. Cette émission semble se faire en deux temps :

a. Des γ dont la somme est 0,6 MeV correspondant à la réorganisation des orbites après la désintégration β.

b. Un γ unique de 2,6 MeV correspondant au passage du neutron extérieur à l'intérieur du noyau condensé, ce qui est bien de l'ordre de grandeur auquel on devait s'attendre.

Le cas de RaC″ s'interprète de la même façon. La limite du spectre β, bien que non déterminée avec précision apparaît du même ordre que celle de ThC″ (1,7 MeV, d'après Lecoin et Goldstein [8], 1,95 MeV, d'après Devons et Neary [9], 2,1 MeV, d'après Nishida [10]), ce qui suggère que, comme dans les cas précédents, la transformation β se produit à l'intérieur du noyau condensé. L'émission de rayons γ de grande énergie, nécessaire pour que soit satisfaite la conservation de l'énergie entre les deux embranchements donnés par RaC a été observée [9] [10]. Dans le schéma de niveaux nucléaires établi par Nishida [10] à la suite de l'étude des rayons γ de Ra (C + C′ + C″ + D), l'émission d'un photon de 3,2 MeV est consécutive à la désintégration β de RaC″. On peut remarquer que 3,2 MeV représente aussi l'énergie libérée (en général sous forme de plusieurs photons) après l'émission β de ThC″. Il devrait bien en être ainsi d'après l'analyse précédente, puisque les noyaux formés après les désintégrations β ne diffèrent que par le nombre de neutrons extérieurs et que nous avons vu que, dans le cas des noyaux à 82 protons (5), les premiers et troisièmes neutrons extérieurs avaient pratiquement la même énergie de liaison. Leur passage à la case vide du noyau condensé doit alors libérer la même énergie.

6. **La désintégration des éléments à plus de 84 protons**. — Les caractéristiques qui ressortent de la figure 3, sont les suivantes :

1° Pour un nombre donné de protons, l'énergie décroît quand le nombre de neutrons augmente. C'est le caractère que nous avons déjà observé pour les éléments $Z = 83$ et $Z = 84$, lorsque la particule α ne demandait pas de neutrons au noyau condensé. Nous avons interprété ceci par l'interaction des neutrons et protons qui se traduisait par une augmentation sensible de l'énergie de liaison (4) du groupe de deux protons extérieurs quand le nombre de neutrons augmente. Toutes les courbes de la figure 3 présentant sensiblement la même

pente, on peut en déduire que le phénomène est général et du même ordre de grandeur lorsque le nombre de protons est plus élevé. Il semble cependant diminuer, lorsque, avec 90 protons, on atteint 140 neutrons.

2° Pour un nombre donné de neutrons, l'énergie augmente quand le nombre de protons croît. Ceci est la traduction du fait que, pour un nombre donné de neutrons, l'énergie de fixation des groupes successifs de protons va en décroissant.

3° Nous avons vu à la fin du paragraphe 5 que la discontinuité des énergies de liaison qui apparaît pour 82 protons, s'atténue lorsque le nombre des neutrons associés s'élève. Ceci nous suggère que la constitution du noyau condensé doit correspondre en fait à un équilibre entre le nombre des neutrons et des protons associés tel que, si l'un augmente, l'autre doit tendre à augmenter. Cela signifie qu'à toute valeur de Z, doit correspondre une valeur optimum de N, les particules supplémentaires étant moins fortement liées. Pratiquement, si l'on connaissait les lois d'interaction, on pourrait calculer $N(Z)$ et il est évident que l'expérience montrera d'autant mieux la discontinuité de liaison que $N(Z)$ sera plus voisin d'un nombre entier. C'est probablement le cas pour $N(82) = 126$.

En examinant la figure 3, nous sommes amenés à penser que ce doit aussi être le cas pour $Z = 86$ et $N = 134$. En effet, ceci nous explique ce que nous avons considéré comme une anomalie de l'énergie de désintégration de AcX et qui ne serait alors que la conséquence, sur la courbe 88, d'un maximum analogue à celui de la courbe 84 et provenant de ce que l'extraction d'une particule α de AcX demande la participation d'un neutron du noyau condensé. D'autre part, cela nous explique aussi que l'intervalle entre les courbes 88 et 90 soit plus grand que l'intervalle des courbes 88-86 et 86-84, les protons étant moins liés à partir du 89e.

4° Les nombres (4) montrent que l'énergie de condensation des protons est d'autant plus grande qu'il y a par ailleurs plus de neutrons dans le noyau. Il en résulte que la tendance à l'émission β doit être d'autant plus grande dans une série d'isotopes qu'on se déplace vers les noyaux les plus lourds. Sur la figure 3, où nous avons porté les émetteurs β naturels connus, on peut voir que c'est en effet toujours dans cette région qu'on les observe. Cependant, une autre raison concourt à ce résultat. En effet, plus les noyaux sont lourds, plus l'énergie α est faible et plus la période correspondante est grande. Pour que l'émission β soit observable, il faut que sa période propre soit comparable à la période α. C'est probablement pourquoi les corps tels que Rn ou les corps A qui sont riches en neutrons ne manifestent pas d'activité β visible. Il est très probable que des méthodes d'investigation plus perfectionnées permettraient de déceler, dans ces éléments, une activité β à très faible rapport d'embranchement.

5° Inversement, il peut se produire que des activités β masquent complètement une activité α. Par exemple, dans le cas des corps B ou de RaD, on peut estimer l'énergie d'extraction de deux neutrons d'après (1) à 9,2 MeV et de deux protons d'après (10) à 16,5 MeV, d'où pour une particule α éventuelle, une énergie de l'ordre de

$$28{,}2 - 25{,}7 = 2{,}5 \text{ MeV}.$$

A une énergie aussi faible, correspond une période énormément plus longue que celle de l'émission β, de sorte que le phénomène, même s'il existe, est expérimentalement inobservable.

En résumé, c'est seulement pour les corps à énergie α très basse qu'on pourra observer des β avec un rapport d'embranchement égal à 1 aux très faibles énergies, décroissant lorsque l'énergie augmente, pour devenir nul aux énergies élevées.

Un corps paraît échapper à cette règle, Th. Sa position, sur la figure 3, indique que ce devrait être un émetteur β et cela d'autant plus que nous verrons plus loin que sa période α est anormalement élevée.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] Bethe et Backer, *Rev. of Mod. Physics*, 1936, **8-2**, p. 165.
[2] Perey, *C. R. Acad. Sc.*, 1939, **208**, p. 97.
[3] Elsasser, *J. de Physique*, 1934, p. 635.
[4] Bethe et Backer, *Rev. of Mod. Physics.*, 1936, **8**, p. 100 et suiv.
[5] Surugue, *C. R. Acad. Sc.*, 1941, **212**, p. 9 et 337.
[6] Lecoin, *J. de Physique*, 1938, **9**, p. 82.
[7] Arnoult, *Thèse*, Paris, 1939, p. 147.
[8] Lecoin et Goldstein, *C. R. Acad. Sc.*, 1935, **200**, p. 1931.
[9] Devons et Neary, *Proc. Cambridge Phil. Soc.*, 1937, **33**, p. 154.
[10] Nishida, *Phys. Rev.*, 1937, **51**, p. 996.

RECHERCHES SUR LES PHOTO-COMPTEURS ET LEURS APPLICATIONS

Par M. A. DAUVILLIER.

Sommaire. — Après un bref historique, l'auteur décrit la technique élaborée pour réaliser des photo-compteurs stables, fidèles et reproductibles. Il étudie leur mode constructif, le procédé de préparation des cathodes et discute la nature du gaz de remplissage. Deux types de compteurs sont décrits; le second, de conception nouvelle, présente des avantages marqués. Le palier de réponse étendu présenté par ces tubes en fait de véritables appareils de mesure. Il décrit ensuite le montage et l'appareillage utilisés pour la détection et le procédé d'enregistrement basé sur l'emploi d'un cinémographe. L'étude spectrographique des cathodes, dans l'ultraviolet et le visible, entreprise avec M. E. Vassy, a montré l'influence des traces gazeuses adsorbées sur le domaine de sensibilité spectrale, qui a pu être déplacé à volonté dans le sens des hautes et des basses fréquences. L'auteur décrit diverses cathodes très sélectives, couvrant le domaine ultraviolet : 2100-4000 Å, ainsi qu'un type de cathode sensibilisée, couvrant tout le spectre visible jusqu'à 7000 Å. Les principales applications scientifiques, techniques et médicales de ces compteurs sont indiquées. Ces appareils sont appelés à suppléer la plaque photographique et la cellule photoélectrique dans de nombreuses applications.

Historique. — Le tube compteur de particules α a été imaginé par Geiger [1] en 1913. Il se composait d'une petite chambre d'ionisation à pression réduite, munie d'une fenêtre transparente et d'une électrode axiale pointue. Un potentiel positif élevé (1,5 à 5 kV) était appliqué à la chambre à travers une grande résistance (10^9 ohms) et les impulsions étaient observées au moyen d'un électromètre.

Longtemps après, Geiger et Klemperer [2] observèrent que, si la pointe est remplacée par une petite sphère métallique, le champ électrique étant inversé, le compteur devient *proportionnel*, c'est-à-dire que sa réponse est sensiblement proportionnelle à l'ionisation initiale causée par la particule. Ces compteurs permettaient de déceler des particules lourdes en présence de rayons β, γ ou de Röntgen.

Geiger et Müller [3] proposèrent ensuite une forme nouvelle symétrique, mieux adaptée à la détection des rayons Röntgen, qui a rencontré une faveur universelle pour l'étude des rayons cosmiques. Le compteur a la forme d'un condensateur cylindrique dont l'électrode axiale est un fil métallique fin, tendu. Un potentiel *négatif* élevé est appliqué au cylindre. Les impulsions furent enregistrées par Bothe [4] au moyen de triodes actionnant des enregistreurs mécaniques du type téléphonique. Des montages dits en *coïncidence* (Rossi) permettent la détection dans l'espace des particules pénétrantes.

Ces compteurs fonctionnent sur le principe suivant : lorsqu'une particule ionisante traverse un gaz soumis à un champ électrique juste insuffisant pour y provoquer la décharge disruptive, il se produit un arc, aussitôt éteint si la résistance extérieure du circuit excède la limite déterminée par la caractéristique statique volts-ampères et si le milieu ne renferme pas de centres ionisants persistants. La durée de la décharge peut être aussi brève que 10^{-6} sec. Si l'agent ionisant est un photoélectron issu de la cathode, le tube fonctionne en *photo-compteur*. Alors que, dans une cellule photoélectrique usuelle, le courant mesuré est la moyenne du flux électronique (direct, amplifié ou secondaire) issu de la cathode — c'est-à-dire qu'il ne peut guère être mesurable au-dessous de 10^{-15} A — dans le photo-compteur, chaque électron produisant une impulsion décelable, la sensibilité sera quelque mille fois plus grande. Tout compteur G. M. peut donc fonctionner de cette manière lorsque la cathode est illuminée, et c'est afin d'éviter cet effet qu'on les fait fonctionner dans l'obscurité.

Le compteur de Geiger-Müller a été adapté par Rajewski [5] en 1931 à la détection de la lumière ultraviolette. Ces *photo-compteurs* comportaient une fenêtre transparente longitudinale scellée dans la paroi du cylindre. La face interne de celui-ci était recouverte de l'élément utilisé comme cathode (C, Zn, Cd). Un amplificateur à triodes à quatre étages permettait l'enregistrement au moyen d'un compteur téléphonique. La sensibilité spectrale ne fut pas étudiée, mais la sensibilité absolue, évaluée au moyen d'un thermo-élément de Moll, fut estimée à $9 \cdot 10^{-11}$ erg/cm²/sec (12 quanta/cm²/sec) pour la raie 2536 Å du mercure et une durée de mesure de 10 à 12 min.

Locher [6] a étudié la sensibilité dans le visible et l'ultraviolet de cathodes d'éléments purs ou recouverts de diverses teintures. Des photo-compteurs ont été également construits par Karer et Rodionov [7]. Kreucher [8] a étudié la sensibilité spectrale ($4000 > \lambda > 2540$ Å) de : Al, Zn, Cd, Fe et Cu, et l'a trouvée identique à celle de cathodes de cellules photoélectriques. Il trouva que la sensibilité de Zn, Cd et Cu était accrue par activation au moyen d'hydrogène, dans le cas d'une cathode massive, mais non dans celui d'une cathode évaporée.

Kolin [9] et Christoph [10] ont construit des photo-compteurs sensibles dans le visible en déposant par évaporation sur la cathode : Na, Mg et Ca. B. Stoll [11] a établi des photo-compteurs sensibles dans l'ultraviolet en évaporant un film

de platine dans un tube cylindrique en silice. Il a montré que la présence d'hydrogène accroissait la sensibilité (réponse de 100 coups par minute pour la flamme d'une allumette distante de 20 m) et déplaçait le seuil de sensibilité vers les grandes longueurs d'onde (de 3100 Å à 3400 Å).

R. Audubert [12] a étudié la sensibilité spectrale ultraviolette de nombreuses cathodes (Al, Cu I, Cu-Hg, Cu_2O, Zn-Hg, Cd, CdS, SnO_2, PbS, CuS, Ta, PbI, Mg) par ordre de sensibilité décroissante. La plupart de ces combinaisons montraient une courbe continue depuis leur seuil de sensibilité ($2700 > \lambda > 2400$ A) jusqu'à la limite des expériences : 2100 Å, tandis que les éléments Mg, Cd, Al, Ta présentaient un seuil vers 3300 Å et un maximum vers 2300 Å.

De très grandes difficultés expérimentales furent rencontrées. Les courbes de réponse (fréquence des coups en fonction de la tension appliquée, à illumination constante) ne présentaient pas de palier, contrairement aux compteurs G. M. normaux. Les compteurs montraient des phénomènes intenses de fatigue et de vieillissement, et 4 pour 100 seulement d'entre eux étaient sensibles et utilisables pour les mesures.

O. Viktorin [13] a utilisé ces compteurs pour la détection du rayonnement ultraviolet émis par les « cellules de résistance » de Reboul, rayonnement dont nous avions prévu l'existence [14] et auquel nous avions attribué les phénomènes observés par cet auteur.

Construction des photo-compteurs. — Ayant eu l'occasion, depuis 1935, d'établir de nombreux compteurs pour l'étude des rayons cosmiques, nous étions parvenu à construire des tubes présentant un long palier (100 à 200 V), parfaitement stables et reproductibles. Ne doutant pas que des résultats semblables puissent être obtenus dans le domaine des photo-compteurs, nous avons cherché, vers 1937, à construire des tubes susceptibles de constituer de véritables instruments de mesure, fidèles et reproductibles. Sachant combien les effets de surface jouent un rôle essentiel dans les phénomènes photoélectriques, nous nous sommes particulièrement astreint à réaliser et à conserver des surfaces cathodiques pures et inaltérables. Alors que tous les photo-compteurs construits avant nous présentaient des joints graissés ou mastiqués, ce qui paraissait expliquer l'inconstance des résultats obtenus, nous avons mis en œuvre les idées directrices suivantes :

1° Les compteurs doivent être exclusivement construits d'éléments : silice, verres, métaux, soudables au chalumeau, afin de pouvoir être étuvés et évacués dans un vide élevé.

2° Les couches cathodiques doivent être préparées dans le tube lui-même, au besoin dans un vide élevé, et ne jamais être mises au contact de l'atmosphère pendant l'établissement du tube.

Pour satisfaire à ces conditions, deux modèles de tubes ont été réalisés, comportant tous deux des soudures silice-pyrex-tungstène. Ces soudures, d'abord réalisées par Weintraub en 1913, sont aujourd'hui d'un emploi courant dans la technique. Celles que nous avons utilisées, au nombre d'une vingtaine, ont été établies par la Société Gallois et nous ont donné entière satisfaction. Une jonction de 3 cm de diamètre comporte six collerettes de verres ayant des coefficients de dilatation intermédiaires entre ceux de la silice et du pyrex et ne dépasse pas 2,5 cm de longueur. La partie en pyrex est nécessaire pour réaliser la soudure étanche des traversées en tungstène; pour réduire au minimum l'emploi de la silice et son travail; enfin, pour raccorder plus aisément, par soudure, le tube à la canalisation de vide. La transparence à l'ultraviolet de la silice fondue de Gallois a été étudiée par J. Terrien [15]. Une épaisseur de 2 mm transmet encore 82 pour 100 de la radiation 2000 Å et des fenêtres soufflées, de 3 μ d'épaisseur, transmettent encore 1/6e de la radiation 1460 Å.

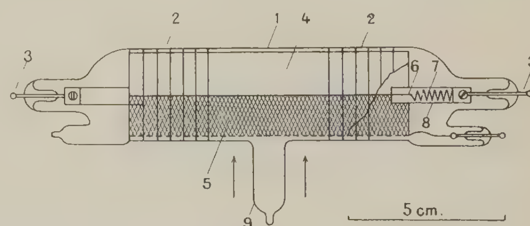


Fig. 1. — Photo-compteur du premier type.

Les compteurs sont scellés sur une canalisation en pyrex rigoureusement étanche, ne comportant que quelques robinets graissés à la graisse de Ramsay et étant demeurés sous vide durant plusieurs mois. Le vide est effectué au moyen d'une pompe moléculaire Holweck, en présence de P_2O_5. Nous n'avons pas utilisé de condenseur à air liquide, et l'installation ne renferme nulle part de mercure.

Le premier modèle de tube établi a la forme du compteur G. M. classique (*fig.* 1). Il est constitué par un court tube cylindrique en silice 1, prolongé aux deux bouts par un raccord silice-pyrex 2 muni de traversées en tungstène 3. La cathode est constituée par une feuille hémicylindrique 4 de l'élément étudié, complétée par un demi-cylindre en toile métallique 5 de même nature, servant de fenêtre. L'anode axiale est un fil 6, de platine ou de tungstène, de 1/20e de millimètre de diamètre, tendu par des ressorts 7 contenus dans des tubes de nickel 8 fixés sur les tiges de tungstène 3 ($d = 1$ mm) servant d'électrodes. Ces fils peuvent être portés à l'incandescence pendant l'évacuation. Un tube

latéral en silice 9, soudé au centre de la fenêtre transparente, permet, au besoin, la distillation, dans un vide élevé, d'un élément volatil sur la face interne de la cathode.

Huit compteurs ont été établis selon ce modèle avec des électrodes de Cu, Ag, Au, Ni, Mo, Pt, Ba et C, ce dernier étant obtenu par peinture à l'aquadag (graphite colloïdal) d'une structure métallique et le baryum étant distillé. Après étuvage et dégazage dans un vide élevé (2 h à 300° C), les cathodes de ces tubes ont été soumises à des traitements thermiques et électriques variés en présence d'hydrogène ou d'oxygène, puis remplis d'hydrogène, de gaz rares ou d'un mélange d'hydrogène-gaz rare (Cosyns), sous une pression voisine de 1/10e d'atmosphère et scellés. Leur seuil d'amorçage est voisin de 800 V. Tous possèdent un palier de comptage étendu, variant de 100 à 200 V et leur réponse dans l'obscurité, due aux rayons cosmiques et à la radioactivité parasite, a la valeur normale de 1 à 2 coups par minute et par centimètre carré de section. La plupart d'entre eux n'ont montré aucune variation de leurs caractéristiques après un fonctionnement de plusieurs centaines d'heures dans l'obscurité ou à la lumière.

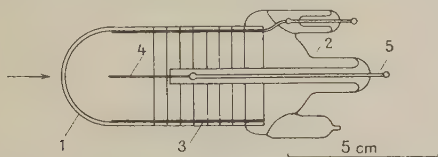


Fig. 2. — Photo-compteur du second type.

Ce mode constructif présente cependant quelques inconvénients. Il comporte deux jonctions silice-pyrex assez coûteuses et le montage du filament est long et délicat. Il ne permet pas aisément l'étude, comme cathode, de nombreux éléments chimiques. Il est difficile aussi d'obtenir une surface photoélectrique parfaitement définie et reproductible à partir d'une électrode massive. Nous avons donc établi un second modèle, plus simple, plus économique et permettant la réalisation de cathodes parfaitement reproductibles. Dans ce modèle, la cathode semi-transparente qui fonctionne par transmission, est établie, dans le tube lui-même, par pulvérisation cathodique du filament anodique dans un gaz approprié. Ce tube comporte une petite cloche hémisphérique en silice transparente 1 (*fig.* 2) raccordée à un pied de lampe 2 en pyrex par une jonction silice-pyrex 3. Comme il n'est pas possible, dans un compteur, de constituer la cathode par un dépôt mince adhérant au verre, par suite du trop petit rayon de courbure limitant une telle électrode et causant un champ électrique trop élevé, le pied de lampe est raccordé au cylindre par une soudure annulaire extérieure. Il est ainsi possible de toucher le verre pendant le fonctionnement sans perturber celui-ci par la production de décharges parasites. La sécurité du fonctionnement est ainsi accrue.

L'anode axiale se compose d'un filament 4 de quelques dixièmes de millimètre de diamètre, formé de l'élément — voire même de la combinaison chimique — que l'on désire utiliser comme cathode semi-transparente. Ce filament est soudé sur une traversée de tungstène 5 à l'intérieur d'un petit tube de garde en pyrex. Nous avons ainsi utilisé des filaments de : C, Mg, Cu, Zr, W, Pt, Au, et même de sulfure de cuivre.

Aucune précaution particulière n'a due être prise concernant l'état de la pointe anodique. La quantité de métal renfermée dans le tube étant réduite au minimum, son dégazage est grandement facilité et nous n'avons pas dû recourir au chauffage par induction. Afin d'établir un contact électrique parfait entre la traversée cathodique et le dépôt semi-transparent, la partie interne du tube cylindrique est peinte à l'aquadag, au montage, jusqu'au niveau de l'émergence anodique. Le dépôt est ainsi partiellement effectué sur cette région conductrice. En général, la pulvérisation produit un dépôt plus épais dans la partie cylindrique que dans la cloche hémisphérique. Pour des raisons de commodité de montage, ce dernier dépôt est seul utilisé comme surface cathodique réceptrice et absorbante, et le compteur fonctionne « en bout ». Le diamètre du tube étant de 3 cm, la surface utile de la cathode est voisine de 12 cm².

Ce second mode constructif s'est révélé, à l'usage, entièrement satisfaisant et nous n'avons plus, dans la suite et pour les applications techniques, construit de photo-compteurs que selon ce dernier type.

Après étuvage et évacuation du tube dans un vide élevé, la pulvérisation de l'anode est effectuée dans un gaz approprié, hydrogène, oxygène ou gaz rare, jusqu'à ce que l'épaisseur voulue — suivie par transparence — soit atteinte. Le tube est alors évacué et le gaz de remplissage est finalement admis sous la pression désirée. Le queusot est scellé et le photo-compteur est prêt à être utilisé. Cette technique n'a pas donné d'insuccès.

L'épaisseur optima de cathode est très faible, comme dans tous les phénomènes dépendant du pouvoir de pénétration des électrons lents. Dans le cas de l'or et du cuivre, par exemple, les épaisseurs efficaces sont celles laissant filtrer une forte lueur verte à la lumière du jour. L'épaisseur est donc moindre que 10^{-5} mm, épaisseur d'une feuille d'or battu. Ces films adhèrent parfaitement au verre et à la silice, puisque la surface interne du tube est « nettoyée » par les ions provenant de la décharge lumineuse accompagnant la pulvérisation cathodique,

L'utilisation d'une cathode fonctionnant par transmission semble aussi augmenter le rendement par rapport à une cathode massive, bien que le pouvoir de pénétration des photo-électrons dans le

métal soit toujours plus faible que celui de la lumière excitatrice. C'est que les films obtenus par pulvérisation cathodique adsorbent toujours le gaz utilisé pour l'évaporation et montrent une dissymétrie dans l'émission photoélectrique qui a été étudiée par Chien Cha [16] dans le cas des films de Pt. L'émission est plus intense dans le sens de la propagation du photon que dans le sens opposé, et cet effet peut largement compenser l'absorption exercée par le film sur la lumière incidente.

Le fonctionnement du compteur G. M. n'est pas lié à la dissymétrie des électrodes. C'est ainsi que Gisolf [17] a pu faire fonctionner en compteur des lampes au néon irradiées par des rayons β et que nous avons pu utiliser comme photo-compteurs [18] des tubes relais de Richter et Geffcken dont les électrodes sont des plaques métalliques rectangulaires parallèles et identiques.

Gaz de remplissage. — La théorie du fonctionnement des compteurs G. M. n'est pas encore faite, et l'empirisme règne encore au sujet du mode de préparation des électrodes et de la nature du gaz de remplissage. Il est probable que les effets photoélectriques sur la cathode et sur les constituants de ce gaz, même à l'état de traces, jouent un rôle important dans le processus de la décharge.

Si la nature et l'état physique de la cathode et de l'anode n'ont que peu d'importance du point de vue des propriétés électriques du compteur (seuil, palier, etc.), la nature et le degré de pureté du gaz de remplissage jouent, au contraire, un rôle essentiel. Nous n'avons utilisé ni l'air, ni l'oxygène, ni les vapeurs organiques, mais seulement les gaz rares bruts ou purs, l'hydrogène commercial ou pur et le mélange des deux, préconisé par Cosyns. L'hélium, le néon, l'argon et le krypton, purifiés par le calcium chauffé, n'ont pas donné de bons résultats : le seuil d'allumage est très bas et la décharge, une fois amorcée, persiste malgré la présence d'une grande résistance (10^9 ohms) en série. Ces gaz bruts — que nous devons à l'amabilité de M. G. Claude — nous ont été fournis par la Société « l'Air Liquide ». Ils renferment, en général, un millième d'oxygène (¹) et, dans ces conditions, peuvent servir au remplissage des compteurs, lorsqu'on veut éviter l'emploi de l'hydrogène et l'hydruration de la cathode qui en résulte avec certains éléments. Ils n'offrent cependant pas de paliers étendus et leur emploi est bien moins satisfaisant que celui de l'hydrogène.

La technique des compteurs à rayons cosmiques nous avait déjà conduit à utiliser exclusivement, comme gaz de remplissage, l'hydrogène commercial desséché sur P_2O_5, à l'exclusion de tout mélange hydrogène pur-gaz rare. Pour la même pression, le seuil est plus élevé, le palier plus étendu, la qualité des décharges (étudiée à l'oscillographe cathodique) meilleure.

L'hydrogène pur, obtenu par osmose à travers un tube de palladium chauffé ou par passage sur l'amiante platinée chauffée, ne donne pas d'aussi bons résultats. Egelhaaf [19] étudiant les propriétés de compteurs G. M. étuvés, à remplissage d'hydrogène, est arrivé aux mêmes conclusions : l'hydrogène commercial desséché par l'air liquide donnant de meilleurs résultats que l'hydrogène pur obtenu par osmose. D'autre part, Kunz [20] a montré qu'une décharge dans l'hydrogène pur n'active pas les métaux alcalins — dans une cellule photoélectrique — et que des traces d'oxygène (ou de H_2O) sont nécessaires pour obtenir une activation pouvant quintupler la sensibilité. Ce résultat est particulièrement important dans le cas qui nous occupe ici : celui des photo-compteurs.

La tension d'amorçage d'un compteur est d'autant plus élevée que la pression du gaz est plus grande. Avec une pression de 1/10e d'atmosphère d'hydrogène, le seuil est voisin de 800 V. Cette valeur est assez grande pour donner des décharges de grande amplitude sur une résistance de fuite de 10^9 ohms.

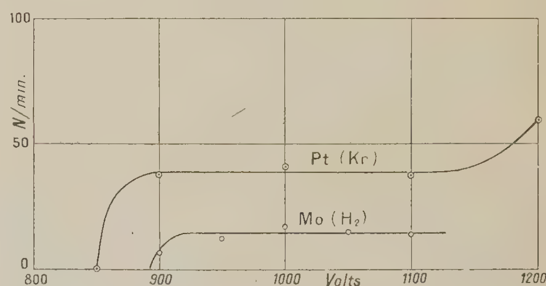


Fig. 3. — Paliers de comptage de deux photo-compteurs.

La figure 3 représente les paliers de deux compteurs du premier type, l'un à cathode de platine et remplissage de krypton brut ($p = 7,5$ cm Hg) : le palier s'étend de 900 à 1100 V; l'autre à cathode de molybdène et remplissage d'hydrogène ($p = 6$ cm Hg) : le palier s'étend de 950 V à plus de 1100 V.

Montage des photo-compteurs. — Les photocompteurs sont montés suivant le schéma classique représenté sur la figure 4, la cathode étant portée à une tension continue négative, excédant d'environ 100 V la tension d'amorçage, et une grande résistance ($10^9\ \omega$) étant insérée dans le circuit. La pulsation correspondant à chaque décharge est transmise à la grille d'une pentode par un condensateur de quelques dizaines de centimètres de capacité.

Comme source de haute tension continue, nous

(¹) A titre d'exemple, voici l'analyse des gaz rares bruts donnée par « l'Air liquide » : Kr : 93,1, N_2 1,3, O_2 0,1, X 5,5, A : 98,9, N_2 1,0, O_2 0,1.

avons utilisé les montages stabilisés par pentode décrits par Evans [21], Ashworth Maugan [22] et Maze [23]. Un voltmètre électrostatique V permet la lecture directe et le contrôle permanent de la tension prise sur un potentiomètre.

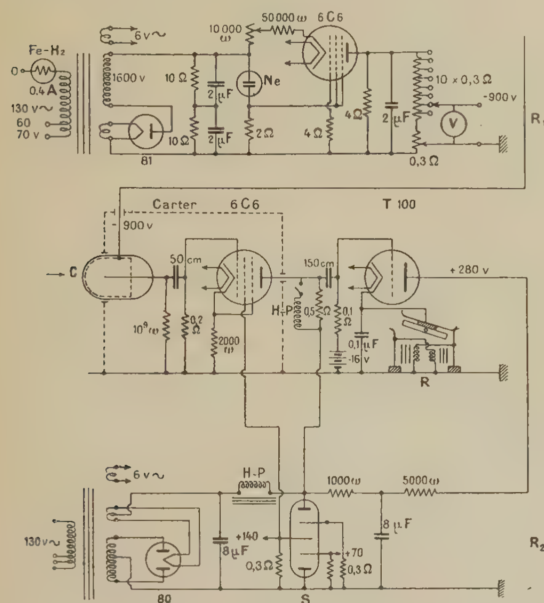


Fig. 4. — Schéma du montage : R_1, redresseur de haute tension; R_2, redresseur de basse tension; C, photo-compteur; R, relais du cinémographe.

Comme résistance de fuite élevée, on peut utiliser les résistances S. S. White, dont le coefficient de température n'est pas gênant pour cette application. Mais nous avons employé, avec satisfaction, des résistances établies en 1935 selon le procédé décrit par Gyemant [24] et beaucoup moins coûteuses. Ce sont des résistances liquides constituées par un mélange d'alcool absolu, de benzène, d'acide picrique et de phénol. La résistivité peut être modifiée en changeant les concentrations relatives de ces constituants. Le liquide est contenu dans un petit tube en cristal muni d'électrodes en platine, représenté sur la figure 5. Le tube, préalablement séché et évacué, est scellé à l'extrémité d'un long et fin queusot que l'on brise dans le liquide pour le remplir. Il se dégage une bulle gazeuse, qui est conservée après scellement, pour éviter la rupture par dilatation thermique. Ces résistances peuvent être établies jusqu'à 10^{10} ohms. Elles sont stables, peu encombrantes, économiques et durables.

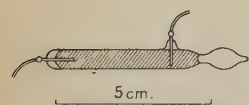


Fig. 5. — Grande résistance liquide de fuite.

On sait que ces résistances élevées peuvent être évitées en éteignant les décharges dans le compteur au moyen d'un thyratron, disposé en parallèle, avec un relais interrupteur en série, selon le montage de Wynn-Williams, ou au moyen d'une pentode, selon le procédé de Neher et Harper [25]. Cependant, ce montage, propre à la mesure de fréquences élevées, n'est pas nécessaire pour les applications que nous avons envisagées, les plus grandes fréquences de chocs mesurables avec le numérateur mécanique téléphonique n'excédant pas 800 coups à la minute et le cinémographe enregistreur, décrit plus loin, n'atteignant pas cette fréquence. Ce montage nécessite aussi une seconde pentode et il a l'inconvénient de faire traverser le compteur par des décharges beaucoup plus intenses, la résistance en série étant mille fois plus petite. Ces décharges peuvent avoir pour effet d'hydrurer les cathodes et d'en modifier, à la longue, les caractéristiques. Aucun effet de ce genre n'a été observé avec le montage classique adopté.

Nous avons indiqué que nos compteurs du second type fonctionnaient « en bout ». Cette particularité en rend le montage particulièrement aisé dans un carter métallique cylindrique (en aluminium), mis au sol et orientable, qui contient également la pentode, la grande résistance de fuite, en un mot, toute la partie délicate du circuit d'entrée de grille, devant être protégée contre les influences extérieures. Ce carter, léger et mobile, est relié au reste du circuit, générateurs de tension stabilisés et enregistreurs, par un câble bien isolé à six conducteurs ne nécessitant aucune protection particulière. Le carter peut être muni de diaphragmes, d'une fente réglable ou de filtres, selon les applications envisagées.

Le numérateur téléphonique, type Siemens ou Ericsson à grande impédance (2000 ohms), exige, pour son fonctionnement, un courant d'une trentaine de milliampères. Il peut être inséré dans le circuit de plaque d'une triode de sortie. Nous avons préféré utiliser un petit thyratron, ou triode à gaz, type RCA 885 ou Mazda T. 100, directement contrôlé par la pentode. Tout l'appareillage se réduit ainsi à ces deux lampes, mais le thyratron exige un interrupteur du courant de plaque ou une mise mécanique de l'anode au sol, commandés par le numérateur. La triode à gaz pourrait cependant être rendue auto-interruptrice par un montage tel que celui indiqué par Pickering [26], mais nous n'avons pas réussi, par ce procédé, à obtenir un fonctionnement correct. La liaison entre la pentode et le thyratron peut, naturellement, être réalisée par batterie ou par capacité. Le schéma représente ce second mode de liaison. L'alimentation de la pentode est stabilisée au moyen d'un potentiomètre à décharge S (lampe, stabilovolt). Un haut-parleur (H. P.) facilite le réglage.

La fréquence d'obscurité des compteurs du second type étant de quelques coups par minute, il est ainsi possible de mesurer des fréquences attei-

gnant 800 coups par minute. Pour aller plus loin, il est nécessaire d'utiliser un numérateur d'inertie mécanique plus réduit, tel que le compteur Cenco (Central Scientific C°, de Chicago) à grande impédance (3300 ω), qui permet d'atteindre une fréquence dix fois plus grande.

Pour de nombreuses applications, il est nécessaire d'enregistrer en fonction du temps, la réponse des compteurs. La meilleure solution consiste — comme Bureau l'a montré pour l'enregistrement des parasites atmosphériques, — à utiliser un cinémographe de Richard. Le tracé s'effectue au moyen d'une plume inscrivant à l'encre sur papier étalonné et il est immédiatement observable. Nous avons obtenu le contrôle du cinémographe par le numérateur téléphonique en rendant l'axe de celui-ci solidaire du tambour des unités et en montant, en bout d'arbre, un commutateur inverseur tournant, envoyant, dans le relais du cinémographe, le courant d'une batterie (12 V × 30 mA).

Ce dispositif, qui a convenablement fonctionné durant des centaines d'heures d'enregistrement, permettait, tout en totalisant les décharges, d'utiliser sans aucune transformation le cinémographe ([2]). Moyennant un montage de contacts isolés sur le relais de cet appareil, il serait plus simple d'actionner celui-ci directement par le thyratron, en supprimant le numérateur, son contacteur et la batterie. C'est le montage qui est schématisé sur la figure 4. Un exemple d'enregistrement obtenu au cinémographe est représenté sur la figure 10. La sensibilité est grande, une largeur de papier de 12 cm correspondant à 150 coups par minute.

Le cinémographe de Richard est un appareil de conception remarquable, mais de réalisation ancienne. Il est lourd, encombrant et peu transportable. Il inscrit sur cylindre en coordonnées curvilignes. La déformation qui en résulte, de peu d'importance pour un instrument météorologique, n'est pas admissible pour l'enregistrement précis de la réponse d'un compteur. Dans le but de remédier à ces inconvénients, nous avons, avec le concours de notre aide-technique, M. Brebion, entrepris la construction d'un cinémographe de même principe, fonctionnant dans un boîtier métallique vitré d'enregistreur électrique industriel et inscrivant, en coordonnées rectilignes, sur papier perforé indéfini. Cet appareil, facilement transportable, complétera l'équipement de nos photo-compteurs, dont tout le montage, représenté sur la figure 4, est contenu dans un boîtier en duralumin (25 kg) et fonctionne entièrement sur le secteur à courant alternatif.

L'emploi du thyratron et de contacts secs peuvent avoir des inconvénients au voisinage d'amplificateurs sensibles. Dans ce cas, il est nécessaire de recourir à la solution adoptée par Bureau pour l'enregistrement des atmosphériques et d'utiliser un relais de cinémographe à ressort antagoniste contrôlé par une triode de sortie.

([2]) Mis obligeamment à notre disposition à l'Observatoire du Pic du Midi par M. J. Baillaud.

Réponse des photo-compteurs. — La loi de réponse a été étudiée pour deux compteurs (Cu et Mg), dans le domaine ultraviolet et visible, en appliquant la loi de l'inverse du carré des distances. Une très faible lampe à incandescence (ampoule de lampe de poche, en série avec un rhéostat), alimentée par un accumulateur, était éloignée jusqu'à la distance de 30 m. Les réponses, limitées à 500 coups par minute, portées en fonction de $\frac{1}{r^2}$ s'écartent régulièrement mais assez peu de la loi linéaire, dans le sens d'une trop faible réponse aux fortes fréquences. Cet effet peut être attribué au temps mort du système enregistreur, car il diffère peu pour les deux compteurs. Nous ne l'avons pas encore recherché avec l'enregistreur Cenco, ce travail ayant été partiellement interrompu par les événements de 1940. Avec l'appareillage ci-dessus décrit, les mesures nécessitent, de ce fait, une correction que l'on peut espérer supprimer avec un enregistreur rapide.

Le rendement d'une cathode de photo-compteur doit, théoriquement, être le même que celui d'une cathode de cellule photoélectrique. Gudden [27] a estimé ce dernier à 10^{-3}, c'est-à-dire qu'un seul photo-électron sur mille photons absorbés a chance de s'échapper de la surface. Des mesures énergétiques de sensibilité dans l'ultraviolet n'ont pas été encore exécutées. Disons seulement que le photo-compteur au magnésium sensibilisé pour le visible décèle, sans optique et en quelques secondes, le rayonnement d'une bougie à la distance de 40 m.

Étude spectrographique des photo-cathodes. — La sensibilité spectrale des photo-compteurs a été étudiée en collaboration avec M. E. Vassy [28] au moyen d'un monochromateur double de Halle-Müller, en utilisant comme source, dans l'ultraviolet ($2000 < \lambda < 3500$ Å) le spectre continu d'un tube à hydrogène (60 mA × 1,2 kV) et, dans le proche ultraviolet et le visible, une lampe à incandescence à ruban de tungstène et à fenêtre de quartz. Selon la sensibilité des compteurs, les fentes étaient ouvertes de manière à donner une réponse maxima ne dépassant pas 500 coups par minute. La limite commune de 2000 Å, observée du côté des hautes fréquences, semble attribuable à l'absorption exercée par la grande épaisseur de quartz traversée dans le monochromateur. Un maximum secondaire à 2300 Å, présent sur presque toutes les courbes, paraît dû à une trace d'un oxyde volatil provenant des électrodes [Ni réduit de Ni $(CO)_4$?].

Les photo-compteurs que nous avons établis, possédant une fenêtre transparente de silice de 1 mm d'épaisseur, ne sont utilisables, dans l'ultraviolet,

que jusque vers 2000 Å environ. Leur domaine spectral de sensibilité dépend, comme en photoélectricité usuelle, du caractère électropositif de la surface

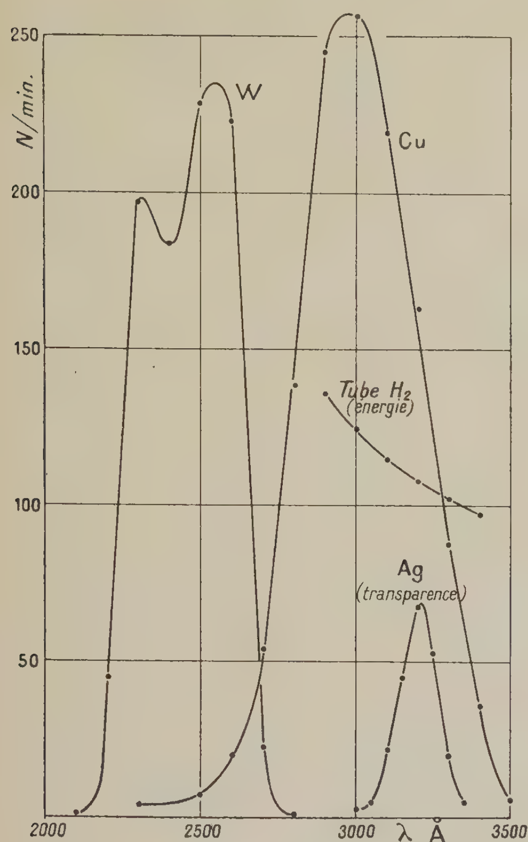


Fig. 6. — Courbes de réponse du tungstène (W) et du cuivre (Cu) évaporés. Bande de transparence de l'argent (Ag) relevée avec le compteur Cu et le tube à hydrogène.

cathodique, c'est-à-dire du travail électronique de sortie. Pour réaliser des compteurs sensibles dans cet ultraviolet lointain, il est nécessaire de s'adresser à des éléments très faiblement électropositifs et même à des combinaisons chimiques à travail de sortie électronique élevé. La relation du quantum fait, en effet, correspondre la radiation 2000 Å à l'énergie 6,2 eV, déjà considérable pour une combinaison chimique. Parmi les éléments le moins électropositifs, se trouvent les métaux des groupes du platine (W-Pt) et du fer (Cr-Ni), qui conviennent dans cette région. Ainsi le tungstène, dont le travail de sortie est bien connu (4,5 eV), donnerait un seuil pour $\lambda = \frac{12350}{4,5}$, soit 2750 Å. Les cellules photoélectriques au tungstène (Westinghouse WL-774) sont, en effet, sensibles entre ce seuil et la limite de transparence de la silice. La courbe W de la figure 6, qui représente la réponse d'une cathode de tungstène évaporée dans l'argon, montre effectivement un seuil dépassant peu 2700 Å et un maximum principal à 2500 Å.

La cathode de tungstène est pratiquement stable dans l'hydrogène et son seuil ne se déplace pas, par hydruration, vers les grandes longueurs d'onde, à la suite d'un fonctionnement prolongé. Par contre, la cathode de platine s'hydrure très aisément. En outre, sa sensibilité s'accroît très rapidement dans l'hydrogène. Le seuil théorique du platine est $\lambda = \frac{12350}{6,3} = 1960$ Å. Le platine massif (*fig.* 7, courbe II) étudié dans un compteur à remplissage de krypton a présenté un seuil à 2700 Å et un maximum à 2300 Å accusant une hydruration au pompage probablement due à une trace de vapeur d'eau. Le platine pulvérisé dans l'oxygène, avec remplissage d'argon, a présenté (courbe I) un seuil pour 2200 Å avec un maximum pour 2150 Å, se rapprochant beaucoup de la limite théorique. Avec un remplissage d'hydrogène (courbe III), le seuil s'étend à 3000 Å et le maximum se place à 2650 Å. L'hydruration provoquée par chauffage dans l'hydrogène (1 h à 300°C) n'étend pas cette limite du côté des grandes longueurs d'onde. Deux autres éléments appartenant au même groupe, Mo et Ni, ont été étudiés à l'état massif dans des compteurs du premier type. Le molybdène, dont le seuil théorique est 3000 Å, a présenté un seuil pour 2500 Å et un maximum pour 2250 Å (hydrogène). Bien que la surface paraisse propre, elle s'était donc oxydée superficiellement au montage. Le nickel, dont le seuil théorique est 2450 Å, a montré un seuil à 3200 Å et un maximum à 2700 Å (hydrogène). Après chauffage, 1 h dans l'oxygène à 300°C et remplissage de Kr, le seuil s'est déplacé à 2550 Å.

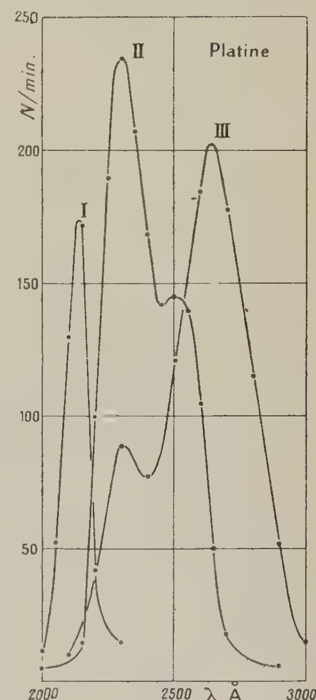


Fig. 7. — Déplacement de la sensibilité spectrale du platine par traitement de la cathode : I, platine pulvérisé dans l'oxygène (compteur à argon); II, platine massif dans un compteur au krypton; III, platine pulvérisé dans l'argon (compteur à l'hydrogène).

Pour réaliser un photo-compteur stable, uniquement sensible dans un domaine spectral peu étendu, dans la région voisine de la limite de transparence de la silice, il n'est plus possible de s'adresser à un

métal. Il est probable que certains métalloïdes assez conducteurs puissent convenir dans cette région, mais nous avons plus aisément réussi à établir un tel photo-compteur avec une cathode de sulfure de cuivre. La conductibilité de CuS massif est très grande ($\rho = 40.10^{-6}$ ohm/cm), de nature métallique et obéit à la loi d'Ohm. Le fil de cuivre anodique d'un compteur fut profondément sulfuré à chaud dans la vapeur de soufre, puis scellé et soumis à la pulvérisation dans le krypton. On pouvait craindre une décomposition du sulfure pendant cette opération. Cependant, la pulvérisation, quoique lente, fut normale et donna un film translucide et homogène brun clair de sulfure conducteur. Pour un film de 200 Å d'épaisseur obtenu sur l'eau, H. Devaux a trouvé une résistance spécifique : $\rho = 4.10^{-1}$, 6000 fois plus grande seulement que celle du sulfure massif. Nous n'avons pas étudié la conductibilité du film évaporé. Il suffit d'ailleurs qu'elle soit inférieure à celle de la grande résistance en série.

La sensibilité spectrale de cette cathode est représentée sur la figure 8. Le seuil est à 2300 Å et le maximum à 2200 Å. Le domaine de sensibilité est remarquablement réduit : 200 Å. Ce compteur a été établi pour rechercher la réapparition du spectre solaire à grande altitude entre les bandes d'absorption de l'oxygène et de l'ozone.

Les expériences précédentes montrent qu'une oxydation des cathodes métalliques déplace la courbe spectrale vers les hautes fréquences, tandis qu'une hydruration produit l'effet inverse. Il était intéressant de rechercher si ces effets étaient dus à de véritables actions chimiques ou à des films de gaz adsorbés. Pour élucider cette question, nous avons étudié l'action de divers traitements sur des cathodes de carbone massives (aquadag) ou évaporées, l'anode du compteur étant constituée, dans ce dernier cas, par un fragment de filament âgé de lampe à incandescence, pulvérisé dans le krypton. Les oxydes et les hydrures du carbone étant gazeux, toute modification de sensibilité spectrale devait être alors rapportée à une couche monomoléculaire de gaz adsorbé.

La cathode de graphite évaporée, et la cathode de graphite colloïdal massive, ont présenté, en présence d'hydrogène, les mêmes courbes de sensibilité : seuil théorique pour 3000 Å et maximum à 2650 Å. Le chauffage dans l'oxygène (1 h à 300°) avec remplissage de Kr, a reporté le seuil à 2600 Å et le maximum à 2300 Å. Il s'agit donc bien de films gazeux adsorbés.

Les éléments de la première famille : Cu, Ag et Au, ont été étudiés à l'état massif et à l'état de films pulvérisés dans l'argon pur. Le cuivre massif, propre, dans une atmosphère de Kr, montre un seuil à 3250 Å et un maximum à 2850 Å, qui doivent correspondre à un oxyde, mais qui ne coïncident pas avec le seuil *photoélectrique* : 2580 Å trouvé par Wasser [29] pour Cu_2O. Dans l'hydrogène, le seuil est déplacé à 2800 Å et le maximum à 2600 Å, état correspondant encore à une oxydation, car le cuivre évaporé dans l'argon (*fig.* 6, courbe Cu) montre un seuil à 3500 Å et un maximum à 3000 Å. Cette cathode, qui doit représenter un hydrure de cuivre, est extrêmement sensible. Elle possède une sensibilité spectrale qui en fait un détecteur particulièrement adapté à la mesure de l'ultraviolet solaire ou artificiel.

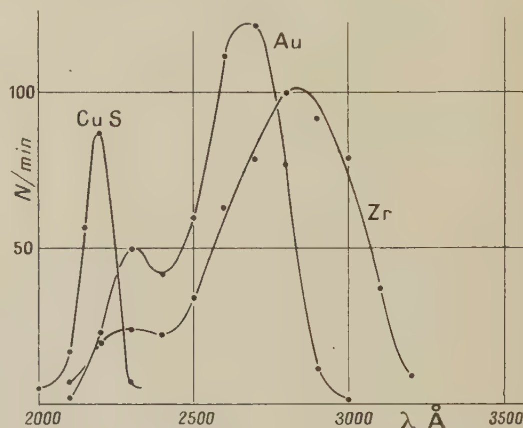


Fig. 8. — Courbes de réponse du sulfure de cuivre, de l'or et du zirconium évaporés.

L'argent massif, chauffé 1 h à 300° C dans l'oxygène ($p = 70$ cm Hg), montre, en atmosphère de Kr, un seuil à 2400 Å et un maximum à 2200 Å, alors que le seuil théorique est à 2680 Å. Il a donc retenu un film d'oxyde. Chauffé dans l'hydrogène (1 h à 300° C) ou hydruré par une décharge dans H_2 raréfié, en le prenant comme cathode (selon la technique utilisée pour hydrurer les cathodes des cellules photoélectriques à éléments alcalins), il devient considérablement plus sensible, le seuil atteint 2800 Å et le maximum 2600 Å. Cette sensibilité se conserve en atmosphère de gaz rare.

L'or massif, même chauffé dans l'oxygène (1 h à 300° C), montre en atmosphère inerte (Kr), le seuil théorique 2550 Å avec un maximum à 2250 Å. Évaporé dans un gaz rare pur (A), il s'hydrure fortement en atmosphère d'hydrogène, le seuil se déplace à 2950 Å et le maximum à 2700 Å. Sous cette forme, il constitue un excellent compteur très sensible adapté à la mesure de l'extrémité ultraviolette du spectre solaire diurne et même nocturne, comme nous le montrerons en étudiant les applications de nos photo-compteurs. Sa courbe de réponse est représentée sur la figure 8.

Pour établir des photo-compteurs sensibles au rayonnement ultraviolet de plus grandes longueurs d'onde, il convient de s'adresser à des éléments plus électropositifs. Le zirconium (3) évaporé dans

(3) Aimablement fourni par la Société Philips, d'Eindhoven.

l'argon pur montre, en atmosphère d'hydrogène, une courbe voisine de celle du carbone avec un seuil à 3200 Å et un maximum à 2800 Å (*fig.* 8). Cette sensibilité ne paraît pas correspondre à un film d'hydrure, malgré la très grande affinité de ce métal pour H_2, les *cellules photoélectriques* à vide au titane, au zirconium, au thorium, montrant sensiblement la même sensibilité spectrale.

Ces cellules sont utilisées en thérapeutique pour le dosage de l'ultraviolet solaire ou artificiel, concuremment aux cellules au cadmium, leur sensibilité spectrale se rapprochant beaucoup de la courbe spectrale érythémale, qui s'étend entre 3150 Å et 2800 Å avec un maximum accusé à 2970 Å. Le photo-compteur au zirconium est donc particulièrement adapté à cette application et résoud le problème par une solution technique beaucoup moins délicate.

Photo-compteurs pour le domaine visible. — Bien entendu, les éléments radioactifs, comme le thorium et l'uranium, ne peuvent constituer des cathodes de photo-compteurs. Il en est de même pour les éléments alcalins, dont l'émission thermoélectronique, à la température ordinaire, est déjà trop grande.

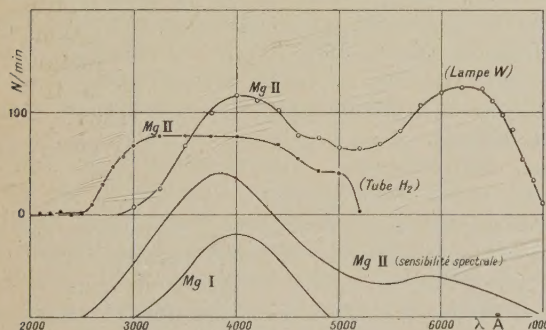


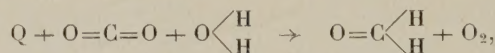
Fig. 9. — Sensibilités spectrales du magnésium évaporé et sensibilisé dans le visible. Courbes expérimentales de réponse fournies par le tube à hydrogène et la lampe à incandescence (W) à fenêtre de quartz.

Ceci explique pourquoi les efforts faits en vue de réaliser des photo-compteurs sensibles dans le spectre visible, en utilisant des éléments alcalins, étaient toujours demeurés vains. Nous avons pourtant réussi à établir de tels compteurs, mais sur un principe tout différent. Nous avons vu que l'oxydation d'un élément chimique augmentait le travail électronique de sortie et déplaçait la courbe de sensibilité spectrale du côté des hautes fréquences. Or, si la quantité d'oxygène adsorbée est suffisamment faible, on peut, dans certains cas, constater l'effet inverse. C'est le procédé technique utilisé pour étendre, dans l'infrarouge, la sensibilité photoélectrique des métaux alcalins : K et Cs. Nous avons cherché à appliquer cette méthode à des éléments assez peu électropositifs, comme le magnésium, pour ne donner aucune émission thermoélectronique appréciable à la température ordinaire. La sensibilité photoélectrique de cet élément est bien connue : le seuil apparaît pour 3500 Å. Déjardin [30] a proposé la cellule photoélectrique au magnésium pur, sublimé, pour la mesure du rayonnement ultraviolet en thérapeutique. Koller et Taylor [31] ont, de même, proposé l'alliage Mg-Cd pour constituer une cathode ayant une courbe de sensibilité spectrale voisine de la courbe érythémale.

Or, si l'on sensibilise une cathode de Mg pulvérisé dans l'argon par une trace d'oxygène, on observe une courbe en cloche (Mg I) s'étendant de 3000 Å jusqu'à 4900 Å (*fig.* 9), c'est-à-dire dans le bleu et jusqu'au voisinage du vert, le tube étant rempli d'hydrogène. Il est même possible d'ajouter, à cette bande de sensibilité, une seconde bande s'étendant jusqu'à 7000 Å, c'est-à-dire jusqu'à l'extrémité rouge du spectre et présentant un maximum secondaire pour 5800 Å (Mg II). Le travail électronique de sortie du magnésium passe donc, par ce traitement, de 3,5 eV à la moitié de sa valeur initiale : 1,7 eV.

Cet effet confirme une observation accidentelle ancienne de R. Pohl et P. Pringsheim [32] qui avaient observé le déplacement du seuil de sensibilité de cathodes de Al et Mg distillées, respectivement jusqu'à 7000 et 10000 Å.

Cette sensibilisation du magnésium à la lumière rouge est-elle de nature à expliquer le rôle du magnésium dans l'assimilation chlorophyllienne ? On sait que celle-ci peut être schématisée par la réaction photochimique



$$Q + O{=}C{=}O + O\langle {}^{H}_{H} \rightarrow O{=}C\langle {}^{H}_{H} + O_2,$$

Q représentant le quantum d'une lumière ultraviolette voisine de 2000 Å, soit : 6,3 eV.

La même réaction photochimique produite, grâce à la chlorophylle, par une radiation (6800 Å) de quantum 3 fois plus petit, n'est certainement pas due à l'adsorption simultanée de 3 quanta de lumière rouge, mais bien plutôt à un effet photoélectrique direct attribuable au magnésium. Cet élément catalyseur, qui, avec le potassium, est un constituant universel des organismes autotrophes est, au contraire, un poison pour les hétérotrophes. La chlorophylle en contient 3 pour 100 à l'état de combinaison organo-magnésienne (Willstäter).

Ces photo-compteurs à cathode de magnésium sensibilisé peuvent, bien entendu, lorsque utilisés dans le visible, être entièrement construits en pyrex. Ils sont alors établis économiquement, mais leur réalisation est encore délicate et nous n'en avons pas encore construit, possédant d'aussi bonnes

caractéristiques électriques que celles des compteurs ultraviolets déjà décrits.

On peut encore obtenir un compteur sensible dans le visible en utilisant les éléments alcalino-terreux. C'est ainsi qu'un compteur du premier type, dans lequel nous avons distillé dans un vide élevé un dépôt de baryum sur une structure en nickel, a présenté une sensibilité s'étendant de 2600 Å à 5600 Å (jaune-vert) avec un maximum à 5000 Å (bleu-vert). Cependant, la technique consistant à sensibiliser le magnésium est plus simple et conduit à de meilleurs résultats.

Applications des photo-compteurs. — Les applications des photo-compteurs à la physique, la géophysique, la technique et la médecine sont fort nombreuses. Ils s'imposent d'abord toutes les fois que l'on veut mesurer un rayonnement très faible, leur sensibilité étant mille fois plus grande que celle des cellules photoélectriques et, surtout, dans le domaine ultraviolet, où la sensibilité des cellules est faible et la mesure du courant photoélectrique particulièrement difficile. Dans le cas des rayonnements intenses (applications médicales, par exemple), il est toujours possible de réduire l'intensité du rayonnement par des diaphragmes et des écrans neutres absorbants.

Nous avons vu qu'il était possible d'établir des compteurs extrêmements sélectifs, uniquement sensibles dans un étroit domaine spectral. Cette propriété constitue un avantage important sur la plaque photographique. De plus, leurs indications quantitatives sont quasi instantanées, les durées de mesure étant de l'ordre de la minute. Relativement aux cellules photoélectriques, leur grand avantage est qu'ils évitent les délicates mesures électrométriques, avec toutes les difficultés d'isolement qu'elles comportent et les lectures au microscope qu'elles exigent avec les appareils transportables.

Avec les photo-compteurs, au contraire, la technique est très simplifiée et rendue beaucoup moins délicate. Nous avons vu que les montages et le matériel utilisés étaient fort apparentés à ceux utilisés en radiotechnique. Ils peuvent donc être employés dans les conditions les plus diverses, en plein air et sur le terrain. Leur sensibilité aux rayons cosmiques et aux radiations pénétrantes d'origine radioactive, loin d'être gênante, constitue plutôt un avantage, en ce sens que cette réponse parasite permet, en tout temps et en tout lieu, de contrôler visuellement ou par l'écoute, le bon fonctionnement de l'installation. Enfin, pour bien des applications pratiques, l'enregistrement, au moyen du cinémographe, constitue un avantage important sur l'enregistrement photographique.

Ces généralités exposées, nous allons énumérer rapidement quelques unes des applications que nous avons effectuées, ou que nous envisageons, de l'appareillage ci-dessus décrit.

Applications scientifiques. — L'examen des variations de la sensibilité spectrale d'une cathode de photo-compteur, sous diverses influences, offre un nouveau mode d'étude de la chimie des lames minces et des couches monomoléculaires, beaucoup plus sensible que la méthode photoélectrique usuelle et susceptible de fournir des résultats nouveaux. Pour cette application, le photo-compteur reste scellé sur la pompe devant le monochromateur. Il est ainsi possible de relever, d'une manière presque continue, l'influence de traces de gaz étrangers en fonction de la température et de la pression, en atmosphère convenable. Un vaste travail de recherche demeure à effectuer dans ce domaine, en liaison avec les données fournies par la méthode photoélectrique, la méthode de l'émission thermo-électronique et l'examen au microscope électronique. Mentionnons aussi l'étude de films de radio-éléments et de la pulvérisation cathodique.

Les mesures spectrographiques d'émission et d'absorption peuvent être rapidement effectuées dans le domaine ultraviolet au moyen de photo-compteurs. La figure 6 représente ainsi, à titre d'exemple, la bande de transparence ultraviolette de l'argent, observée avec le spectre continu d'un tube à hydrogène, un écran d'argent sur quartz et un compteur à cathode de cuivre. Le dépôt chimique était assez opaque dans le visible pour juste permettre de percevoir par vision rapprochée (en bleu), le filament d'une forte lampe demi-watt. Il est également possible de suivre par enregistrement les variations et le vieillissement de sources lumineuses ultraviolettes.

Les luminescences ultraviolettes très faibles, comme celles accompagnant l'oxydation du phosphore, du soufre, de l'arsenic, des métaux alcalins, certaines oxydations organiques, la triboluminescence, la phosphorescence de minéraux, etc., peuvent être facilement suivies quantitativement avec des photo-compteurs. Rajewski avait appliqué ses premiers tubes à la détection du rayonnement « mitogénétique ».

Audubert a étudié les faibles rayonnements ultraviolets accompagnant de nombreuses réactions chimiques au moyen de ses photo-compteurs.

Disons que, ainsi que l'on pouvait s'y attendre, nous n'avons trouvé aucune émission ultraviolette dans le rayonnement du ver luisant. Il en est probablement de même pour les photo-bactéries.

La photométrie stellaire ultraviolette, jusqu'à la limite de transparence de l'atmosphère, ne semble pas encore avoir été tentée. Elle exige un télescope à miroir aluminé. Elle se heurte à la fluctuation statistique inhérente à toute mesure élémentaire d'un phénomène rare et nécessiterait des mesures assez longues.

Par contre, l'étude du rayonnement ultraviolet solaire est aisée avec les photo-compteurs. Cette méthode a été appliquée pour la première fois

en 1934 par E. Meyer, M. Schein et B. Stoll [33] à la recherche du rayonnement solaire ultraviolet voisin de 2100 Å, théoriquement transmis, à haute altitude, entre les bandes d'absorption de l'oxygène et de l'ozone. Ces auteurs, disposant des photo-compteurs à tungstène, platine et arsenic à la suite d'un monochromateur de Leiss, ont décelé l'apparition d'un tel rayonnement au Jungfraujoch (3460 m). Kiepenhauer [34] utilisant des compteurs au cuivre et au fer, a également décelé, aux environ de midi et par minimum d'ozone, un faible rayonnement voisin de 2150 Å. E. Vassy [35] a calculé que cette radiation ne serait décelable photographiquement que vers l'altitude de 25 km.

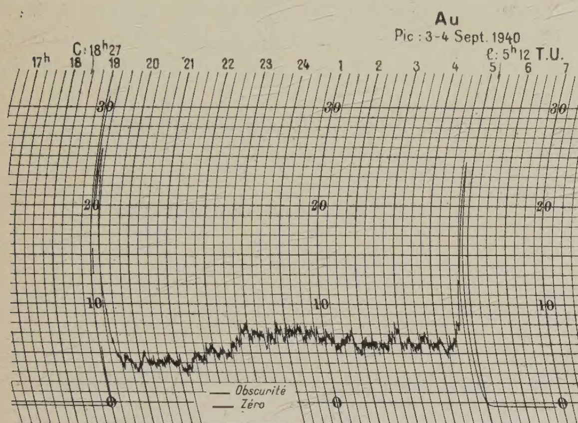


Fig. 10. — Radiation ultraviolette extrême du ciel nocturne enregistrée avec un compteur à cathode d'or (*fig.* 8, Au).

Cette recherche doit, à notre avis, être effectuée avec un compteur sélectif, uniquement sensible au rayonnement recherché, plutôt qu'avec un tube également sensible aux longueurs d'onde supérieures à 2863 Å, limite extrême du spectre solaire transmis par l'atmosphère (Götz, 1800 m). L'on se met ainsi complètement à l'abri de toute trace de lumière parasite diffusée par le système optique. Or, celle-ci est quelque 10^8 fois plus intense que celle à déceler.

Nous avons eu l'occasion [36] d'effectuer cette recherche à l'Observatoire de Pic du Midi (2875 m) au début de septembre 1940, soit pendant le minimum annuel de l'ozone, avec le compteur au sulfure de cuivre déjà décrit. Il était simplement exposé au soleil et recevait, en outre, le rayonnement du ciel entier. Les enregistrements ont été effectués les 2, 3, 4, 5 et 6 septembre par ciel très pur (coronal) et totalisent 16 h. Aucun rayonnement ultraviolet, d'une intensité comparable à celle des rayons cosmiques (comme fréquence de chocs) n'a été trouvée à cette altitude.

Par contre, utilisant des compteurs à l'or, au carbone, au zirconium, nous avons pu enregistrer les variations du rayonnement ultraviolet extrême du ciel nocturne. Ces enregistrements ont été effectués durant la même période, au Pic, du crépuscule à l'aube, les 2 et 3 septembre, par ciel très pur, en utilisant le ciel zénithal. Ce rayonnement ne parvient d'ailleurs au sol que selon un angle solide assez réduit, par suite de l'absorption atmosphérique. C'est ainsi que la lumière zodiacale ou une aurore polaire peu élevée sur l'horizon nord (aurore du 19 septembre 1941, observée au Pic de 3 h à 4 h), ne nous ont pas montré d'ultraviolet décelable avec la cathode d'or. Par contre, les *nuits claires* des 18 et 19 septembre l'étaient aussi dans le domaine ultraviolet en observation zénithale.

L'intensité minima de ce rayonnement était triple de celle des rayons cosmiques (1 coup par minute et par centimètre carré de cathode pour ces derniers). Il présentait (*fig.* 10) un maximum important, doublant presque son intensité, vers 0 h ou 1 h (heure solaire locale). Ce maximum nocturne est à rapprocher de celui que l'on observe vers minuit dans l'ionisation de l'ionosphère par la méthode des radio-échos. Un tel maximum avait déjà été constaté visuellement pour la raie verte 5577 Å par Lord Rayleigh et, photoélectriquement, pour le bleu par Bradbury et Sumerlin [37]. Nous avons observé les mêmes effets, au Pic, au moyen d'un enregistreur photoélectrique. Par contre, nous obtenons un minimum dans le rouge.

Des photo-compteurs à cathode de platine ont été utilisés par B. Stoll [38] en 1934 pour doser l'ozone atmosphérique au sol par la méthode spectrographique de Götz et Ladenburg. Nos compteurs se prêtent également bien à l'enregistrement précis de l'ultraviolet solaire des points de vue héliothérapique, météorologique et climatique.

Applications techniques. — La moindre *flamme* nue émettant un rayonnement ultraviolet intense dans le domaine 2000-3000 Å, nous avons proposé le photo-compteur comme appareil avertisseur d'incendie fonctionnant, non plus, — comme tous les appareils proposés jusqu'à ce jour — par élévation de température, mais dès l'instant précis où la plus faible flamme initiale apparaît. Le thyratron peut, en effet, déclencher aisément n'importe quel signal puissant. Nous avons également proposé et étudié nombre d'autres applications techniques dont la description sortirait du cadre de ce Mémoire et qui seront exposées ultérieurement.

Applications médicales. — Le dosage précis des rayons ultraviolets en médecine est un problème difficile qui n'a encore été résolu qu'imparfaitement jusqu'à ce jour par la combinaison de la spectrographie et de la pile thermo-électrique (Coblentz) ou de la cellule photoélectrique (G. Déjardin, R. Latarjet); mais ces solutions sont d'un emploi bien complexe, coûteux et délicat pour les exigences de la pratique.

Les cellules photoélectriques à fenêtre de silice, sensibles dans le domaine ultraviolet (Cd, Zr, Ti, etc.), ont une réponse extrêmement faible nécessitant un système électrométrique très délicat. J. et J.-F. Thovert [39] ont proposé l'emploi d'une cellule usuelle recouverte d'une substance luminescente dans l'ultraviolet (salicylate de sodium). Cette solution, un peu détournée, nécessite des étalonnages délicats et ne supprime pas l'emploi d'un amplificateur à lampes, qui, lorsqu'il est à courant continu, est un instrument peu pratique.

Nous avons vu, par contre, qu'il était possible d'établir des photo-compteurs sélectifs dont la courbe de sensibilité spectrale se confond sensiblement avec la courbe érythémale, ce qui dispense de l'emploi d'un système dispersif à optique de quartz. La sélectivité peut encore être souvent accrue par l'emploi de filtres. C'est ainsi que le photo-compteur au zirconium, construit en pyrex — ou recouvert d'une cloche de ce verre — verra sa trop grande sensibilité réduite, en même temps que sa limite de haute fréquence arrêtée à 2850 Å. Sa courbe de sensibilité spectrale se confondra alors exactement avec la courbe érythémale, et il sera directement applicable à l'héliothérapie. Pour la photothérapie avec source artificielle, au contraire, il convient d'utiliser le tube à fenêtre de silice, la courbe érythémale montrant, d'après Coblentz et Stair, un maximum secondaire à 2550 Å. Le numérateur de l'appareil a, dans ce cas, l'avantage de fournir, par lecture directe, la *dose* totale de rayonnement reçu au cours d'une irradiation.

Notons encore, du point de vue médical, que la sensibilité des photo-compteurs aux rayons X et γ, permet de les utiliser tels quels pour la détection de ces très faibles rayonnements (contrôle de la protection) et pour la recherche rapide et sûre de radio-éléments égarés. Un photo-compteur est tellement sensible aux rayons γ qu'il permet, par exemple, de déceler la radioactivité d'un manchon Auer (ThO_2). L'appareil peut aussi être utilisé pour la prospection des minéraux radioactifs et le contrôle des très faibles radioactivités (sources thermales).

Manuscrit reçu en février 1942.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] GEIGER, *Phys. Zeitsch.*, 1913, **14**, p. 1129.
[2] GEIGER et KLEMPERER, *Z. f. P.*, 1928, **49**, p. 753.
[3] GEIGER et MÜLLER, *P. Z.*, 1928, **29**, p. 839 et 1929, **30**, p. 489.
[4] W. BOTHE, *Z. f. P.*, 1930, **59**, p. 1.
[5] B. RAJEWSKI, *P. Z.*, 1931, **32**, p. 121.
[6] LOCHER, *Phys. Rev.*, 1932, **42**, p. 525.
[7] KARER et RODIONOV, *Z. f. P.*, 1934, **92**, p. 615.
[8] KREUCHER, *Z. f. P.*, 1935, **94**, p. 549 et 1935, **97**, p. 525.
[9] KOLIN, *Rev. Sc. Instr.*, 1935, **6**, p. 230.
[10] CHRISTOPH, *Ann. der Phys.*, 1935, **23**, p. 47.
[11] B. STOLL, *Dissertation*, Basel, 1935.
[12] R. AUDUBERT, *J. de Phys.*, 1935, **6**, p. 451.
[13] O. VIKTORIN, *J. de. Phys.*, 1936, **7**, p. 461.
[14] A. DAUVILLIER, *J. de Phys.*, 1934, **5**, p. 184.
[15] J. TERRIEN, *Revue d'Optique*, 1936, **15**, p. 258-262.
[16] CHIEN CHA, *Phil. Mag.*, 1925, janvier, p. 262.
[17] GISOLF, *Physica*, 1937, **4**, p. 69.
[18] A. DAUVILLIER, *C. R.*, 1937, **205**, p. 36.
[19] H. EGELHAAF, *P. Z.*, 1937, **108**, p. 192.
[20] KUNZ, *J. O. S. A.*, 1937, **6**, p.224.
[21] EVANS, *Rev. Sc. Instr.*, 1934, **5**, p. 371.
[22] ASHWORTH MAUGAN, *Rev. Sc. Instr.*, 1937, **6**, p. 127.
[23] MAZE, *Thèse*, Paris, 1941.
[24] A. GYEMANT, *Z. f. Techn. Phys.*, 1927, **8**, p. 491.
[25] NEHER et HARPER, *Phys. Rev.*, 1936, **49**, p. 940.
[26] PICKERING, *Rev. Sc.Instr.*, 1938, **9**, p. 180.
[27] B. GUDDEN, *Lichtelektrische Erscheinungen*, J. Springer, Berlin, 1928.
[28] A. DAUVILLIER et E. VASSY, *C. R.*, 1939, **209**, p. 394.
[29] WASSER, *Phys. Zeit. Sov. Un.*, 1934, **6**, p. 351.
[30] G. DÉJARDIN et SCHWEGLER, *J. de Phys.*, 1933, p. 80.
[31] KOLLER et TAYLOR, *J. Op. Soc. Am.*, 1935, **25**, p. 184.
[32] R. POHL et P. PRINGSHEIM, *Verh. d. Deut. Phys. Ges. Berlin*, avril 1912.
[33] E. MEYER, M. SHEIN et B. STOLL, *Nature*, octobre 1934, **134**, p. 535.
[34] KIPPENHAUER, *Veröff. d. Univ. Sternw., Göttingen*, n° 60.
[35] E. VASSY, *Rev. d'Optique*, 1936, **15**, p. 81.
[36] A. DAUVILLIER, *C. R.*, 1941, **212**, p. 958.
[37] BRADBURY et SUMERLIN, *Terr. Magn.*, mars 1940, p. 19.
[38] B. STOLL, *Dissertation*, Basel, 1935.
[39] J. et J. F. THOVERT, *C. R.*, 1930, **191**, p. 1058.